Eine kontinuierliche Lyman-α-Quelle basierend auf Festkörperlasersystemen

Dissertation

am Institut für Physik

der Johannes Gutenberg-Universität Mainz

von

Frank Markert

aus Freising

Mainz, den 15. Mai 2009

Inhaltsverzeichnis

1 Überblick **1**

2 Theorie **9**

2.1 Polarisation eines isotropen Mediums durch drei Laserfelder 9

2.2 Berechnung der konvertierten Leistung beim Vier-Wellen-Mischen nach Bjorklund 11

2.3 Der Integralgleichungsformalismus 15

2.4 Die Phasenfehlanpassung Δk 21

2.5 Die nichtlineare Suszeptibilität $\chi_a^{(3)}$ 24

2.5.1 Die partiellen Suszeptibilitäten χ_{12} und χ_{34} 26

2.5.2 Die Abhängigkeit der konvertierten Leistung von der Verstimmung zur Zwei-Photonen-Resonanz 28

3 Die Detektion einzelner Photonen **31**

3.1 Der Photomultiplier 32

3.2 Die Unterdrückung von Nachschwingungen des Signalpulses 34

3.3 Unterdrückung von weiteren Rauschquellen 35

3.4 Die Detektionsschwelle 37

4 Teststand zur Messung der Transmissivität optischer Komponenten bei 122 nm **41**

4.1 Aufbau des Teststandes 41

4.2 Vakuumeinbau der Deuteriumlampe 43

4.3 Eichung des Monochromators 45

4.4 Messungen mit dem Transmissionsstand 46

4.4.1 Transmissionsmessungen bei Lyman-α 46

4.4.2 Maximaler Druck beim Abpumpen von Luft und beim Einfüllen eines Puffergases für Experimente bei 122 nm 49

5 Die Lyman-α-Quelle **51**

5.1 Der Laser bei 253,7 nm 51

5.2 Der Laser bei 407,9 nm 55

5.3 Der Laser bei 545,5 nm 56

5.4 Die Strahlüberlagerung 62
5.5 Die Lyman-α-Erzeugung und Detektion 63
5.6 Einschränkungen beim fundamentalen Lasersystem 66

6 Erste Messungen von Strahlung bei Lyman-α 67
6.1 Die maximale generierte Leistung bei Lyman-α 67
6.2 Scan des blauen Lasers über die 6^1S – 7^1S-Resonanz 68
6.3 Lyman-α-Erzeugung in Abhängigkeit von der Temperatur der Hg-Zelle 70

7 Berechnung der erzeugten Leistung bei Lyman-α 73
7.1 Die Phasenfehlanpassung Δk 73
7.2 Die nichtlineare Suszeptibilität pro Atomdichte $\chi_a^{(3)}$ 75
7.3 Die Phasenanpassungsfunktion $G^{(3)}$ mit Absorption des UV-Laserstrahls und genäherter Dichteverteilung der Quecksilberatome 76
7.4 Die Leistung bei Lyman-α in Abhängigkeit von der Temperatur 78
7.5 Betrachtung verschiedener Einflüsse auf das Ergebnis der Berechnung der Lyman-α-Leistung 80

8 Zusammenfassung 91

A Die Phasenanpassungsfunktion unter Berücksichtigung der Hg-Dichteverteilung, Absorption und Helium 93

B Der Absorptionskoeffizient des UV-Laserstrahls 100
B.1 Die Berechnung des Absorptionskoeffizienten 100
B.2 Die Normierung der Transmission 101
B.3 Vergleich des Absorptionskoeffizienten mit Werten aus der Literatur . 101

C Zusammenstellung aller benötigten Quecksilberdaten 103
C.1 Übergangsfrequenzen, Oszillatorstärken und relative Vorzeichen der Dipolmatrixelementprodukte 103
C.2 Hyperfeinstruktur- und Isotopieverschiebungen, sowie Häufigkeit der Quecksilberisotope 104
C.3 Temperaturabhängigkeit der Quecksilberdampfdichte 105
C.4 Verbreiterung des 6^1S – 6^3P-Übergangs 107

D Mathematica-Quellcodes 110

E Mathematische Symbole 123

Literaturverzeichnis 127

„**Potential Matter. – A Holiday Dream.**

When the year's work is over and all sense of responsibility has left us, who has not occasionally set his fancy free to dream about the unknown, perhaps the unknowable? And what should more frequently cross our dreams than what is so persistently before us in our serious moments of consciousness – the universal law of gravitation...

...These sinks would form another set of atoms, possibly equal to our own in all respects but one; they would mutually gravitate towards each other, but be repelled from the matter which we deal with on this earth. If matter is essentially dynamical, and we imagine the motion within an atom to be reversed, the question arises whether the reversed motion is similar to the original one. And if this is not the case, we must ask ourselves whether the new atom will behave gravitationally like the old one...

...But sources and sinks compel us to the supposition of a fourth dimension, which belongs to the domain of nightmares, not of dreams and we try to shake ourselves free from the idea.

I, for one cannot quite succeed in this effort, for something has been left behind, which is not easily got rid of, when once its symmetrical beauty is perceived. Surely something is wanting in our conception of the universe. We know positive and negative electricity, north and south magnetism, and why not some extra terrestrial matter related to terrestrial matter as the source is to the sink, gravitating towards its own kind, but driven away from the substances of which the solar system is composed. Worlds may have formed of this stuff, with elements and compounds possessing identical properties with our own, undistinguishable in fact from them until brought into each other's vicinity. If there is negative electricity, why not negative gold, as yellow and valuable as our own, with the same boiling point and identical spectral lines; different only in so far that if brought down to us it would rise up into space with an acceleration of 981. The fact that we are not acquainted with such matter does not prove its non-existence...

...But this is not a scientific discussion. I do not whish to argue in favour of the existence of anti-atoms, but only to give my thoughts a free course in the contemplation of its possibility.

What is inertia? When the atom and anti-atom unite, is it gravity only that is neutralised, or inertia also? May there not be, in fact, potential matter as well as potential energy? And if that is the case, can we imagine a vast expanse, without motion or mass, filled with this primordial mixture, which we cannot call a substance because it possesses none of the attributes which characterise matter ready to be called into life by a creative spark? Was this the beginning of the world? Is our much-exalted axiom of the constancy of mass an illusion based on the limited experience of our immediate surroundings?...

...May anti-matter be commended to its care! But I must stop – the holidays are nearing their end – the British Association is looming in the distance; we must return to sober science, and dreams must go to sleep till next year.

Do dreams ever come true?“

ARTHUR SCHUSTER

Kapitel 1

Überblick

Es war im Jahr 1898, als der britische Physiker Sir Arthur Schuster den „letter to Nature“ schrieb, in dem er zum ersten Mal den Begriff „Antimaterie“ verwendete [Sch98]. Er hatte die ebenso geniale, wie für diese Zeit wild spekulative Idee, dass es ein Gegenstück zur Materie, die Antimaterie, geben könnte. Er vermutete gar ganze Sonnensysteme aus Antimaterie, die durch abstoßende Gravitationskräfte von den Sonnensystemen aus Materie fern gehalten werden.
Freilich war es jedoch Paul Dirac, der 30 Jahre später als erster die Existenz von Antimaterie theoretisch postulierte [Dir28] – auch wenn Dirac selbst in dieser ersten mathematischen Postulation von einem Antiteilchen zum Elektron noch meinte, dass diese Lösung seiner Gleichung zu vernachlässigen sei. Erst drei Jahre später schien er sich mit der Idee eines Antiteilchens angefreundet zu haben [Dir31]:

„...a new kind of particle, unknown to experimental physics, having the same mass and opposite charge to an electron. We may call such a particle an anti-electron.“

Es war dann Carl Anderson, der 1932 Aufnahmen von Teilchenspuren in einer Nebelkammer machte, die er zunächst vorsichtig [And32], später aber mit Nachdruck [And33], als Spuren eines positiven Elektrons erklärt und der seither als der Entdecker des von Dirac postulierten Positrons gilt. In Abbildung 1.1 ist eine dieser Nebelkammeraufnahmen zu sehen, die die gekrümmte Spur eines Positrons in einem Magnetfeld zeigt.
Weitere 23 Jahre vergingen, bis Owen Chamberlain und Emilio Sergè mit ihren Kollegen 1955 das Antiproton entdeckten [CSWY55]. Sie kollidierten am Bevatron in Kalifornien, das unter anderem auch speziell für die Suche nach dem Antiproton konzipiert worden war, Protonen mit einem Kupfertarget. Ihre Herausforderung bestand darin aus einem „überwältigenden Untergrund aus π^- Mesonen“ die Signale der ersten 60 Antiprotonen zu extrahieren. Je nach verwendeter Protonenenergie detektierten sie etwa ein bis zwei Antiprotonen unter 10^5 Pionen.

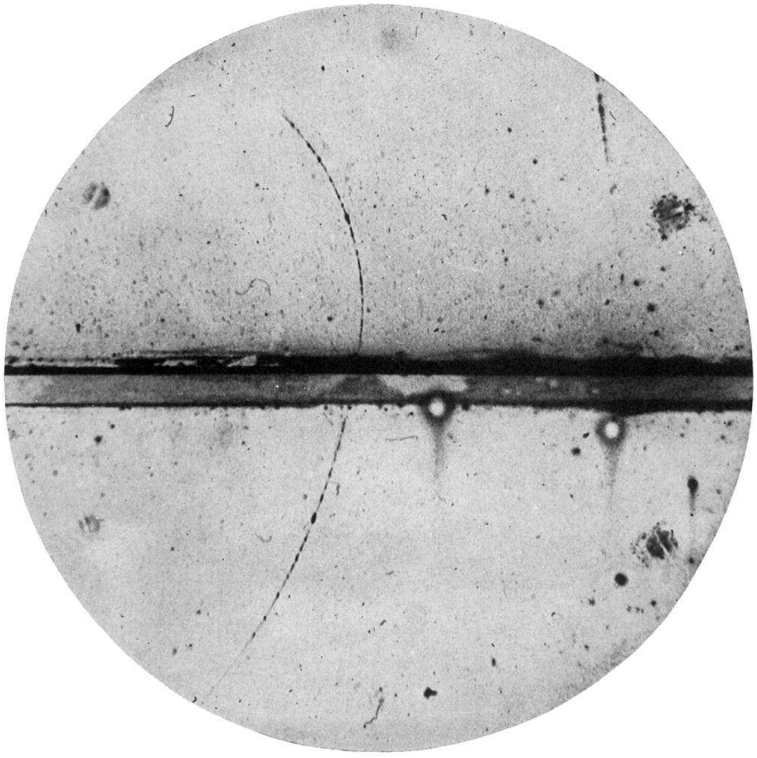

Abbildung 1.1: Spur eines Positrons vor und nach dem Durchgang durch eine 6 mm dicke Bleiplatte in der Mitte des Bildes. Die Bleiplatte verringert die Energie des Positrons von anfänglichen 63 MeV auf 23 MeV [And33].

Aus diesen beiden Teilchen lässt sich nun Antiwasserstoff formen, das einfachste der neutralen Antiatome. Dies ist jedoch nicht ohne weiteres möglich, wie durch die beinahe 40 Jahre verdeutlicht wird, die von der Entdeckung des Antiprotons bis zum erstmaligen Nachweis von Antiwasserstoff vergingen. 1996 ließen [BBB$^+$96] Antiprotonen, die am CERN im „Low Energy Antiproton Ring“ (LEAR) gespeichert waren, mit einem Xenon-Gasstrahl wechselwirken, und zwar bei jedem Umlauf der Antiprotonen um den Speicherring einmal. Mit einer gewissen Wahrscheinlichkeit wird dabei ein kleiner Anteil der Bewegungsenergie eines Antiprotons in ein Elektron-Positron-Paar umgewandelt. Mit einer noch geringeren Wahrscheinlichkeit ist dabei die Geschwindigkeit des Positrons nah genug an der des Antiprotons, so dass die beiden Teilchen ein Antiwasserstoffatom formen können. Mit dieser Methode gelang schließlich der Nachweis von neun Antiwasserstoffatomen. Diese Antiatome waren jedoch mit etwa 90 % der Lichtgeschwindigkeit zu schnell, um über den reinen Nachweis hinausgehende Experimente an ihnen durchzuführen.

Auf dem Weg zu Präzisionsexperimenten mit Antiwasserstoff ist es dann im Jahr 2002 zuerst der ATHENA-Kollaboration [AAB$^+$02] und wenig später der ATRAP-Kollaboration [GBO$^+$02a] gelungen Antiwasserstoffatome aus Antiprotonen und Positronen herzustellen, die gemeinsam bei kryogenen Temperaturen in einer verschachtelten Penning-Falle gespeichert waren. Bei diesen Experimenten wurden die nebenein-

ander in der Falle gespeicherten Antiproton- und Positron-Teilchenwolken durch Manipulation der Fallenpotentiale zur Überlagerung gebracht und so durch sogenannte Drei-Körper-Rekombination Antiwasserstoff in Rydbergzuständen erzeugt. Es folgten eine Bestimmung der elektronischen Zustände [GBO+02b] und der Geschwindigkeit dieser Antiwasserstoffatome [GSS+04, PSG06]. Neben der Drei-Körper-Rekombination wurde noch eine weitere Möglichkeit zur Erzeugung von kaltem Antiwasserstoff realisiert. Beim zweifachen Ladungsaustausch [SSS+04] durchquert über Laseranregung erzeugtes Rydberg-Cäsium die Positronenwolke, wo sich, durch Elektronenübertragung vom Cäsium auf die Positronen, Rydberg-Positronium bildet. Ein Teil dieser, in alle Raumrichtungen erzeugten, Positronium-Atome durchquert dann die Antiprotonenwolke. Die Antiprotonen können wiederum die Positronen des Positroniums an sich binden und so Antiwasserstoff bilden. Der Rydbergzustand dieses Antiwasserstoffs kann über die Laseranregung des Cäsiums kontrolliert werden.
Weil Antiwasserstoff elektrisch neutral ist, wurde er nicht mehr in den Penningfallen gespeichert, sondern annihilierte an den Fallenwänden. Um die Antiwasserstoffatome effizient für weitere Experimente zu nutzen, ist es also wünschenswert sie berührungslos speichern zu können. Prinzipiell eignen sich zu diesem Zweck Magnetfallen, wie sie schon zur Speicherung [HKD+87] und Spektroskopie [CFK+96] von Wasserstoff benutzt wurden. Es gab allerdings einige Kontroversen, ob die zusätzliche Magnetfalle ein Speichern der geladenen Teilchen in der Penningfalle erlauben würde [SYG01] oder nicht [FBB+05], weil durch die zusätzliche Magnetfalle die Zylindersymmetrie der Penningfalle zerstört wird, welche normalerweise eine Speicherung der geladenen Teilchen garantiert [O'N80]. Diese Frage wurde gelöst, als im Jahr 2006 Antiprotonen und Positronen in einer kombinierten Falle für geladene und neutrale Teilchen gespeichert werden konnten [GLS+07]. Ein Jahr später konnte so auch erstmals kalter Antiwasserstoff nachgewiesen werden, der innerhalb des Feldes der Magnetfalle erzeugt wurde [GLS+08]. Abbildung 1.2 zeigt die Ring-Elektroden der Penningfalle, die sich zwischen den Spulen der hier verwendeten Ioffe-Magnetfalle befinden.
Diese Ioffefalle lies sich noch nicht schnell genug abschalten, um eventuelle, in ihrem 375 mK tiefen Magnetfeld gespeicherte, Antiwasserstoffatome im Grundzustand [PSG06, PSNY06] über dem Untergrund der Detektoren nachzuweisen [GLS+08]. Eine wesentlich schneller abschaltbare Ioffefalle könnte in diesem Jahr so zum ersten Nachweis von gespeichertem Antiwasserstoff führen.

Gespeicherte Antiwasserstoffatome bieten ein enormes Potential um Eigenschaften von Materie und Antimaterie mit hoher Genauigkeit zu vergleichen [WPH+03].
Die Frequenz des 1S – 2S-Übergangs in Wasserstoff wurde mit einer relativen Genauigkeit von $1{,}8 \times 10^{-14}$ in einem kalten Wasserstoffatomstrahl bestimmt [NHR+00]. Eine Messung dieser Frequenz mit ähnlicher Genauigkeit in Antiwasserstoff bietet eine exzellente Möglichkeit für einen Test der CPT- und der Lorentz-Invarianz mit Leptonen und Baryonen [BKR99]. Das inhomogene Feld der magnetischen Falle, in der die Anti-

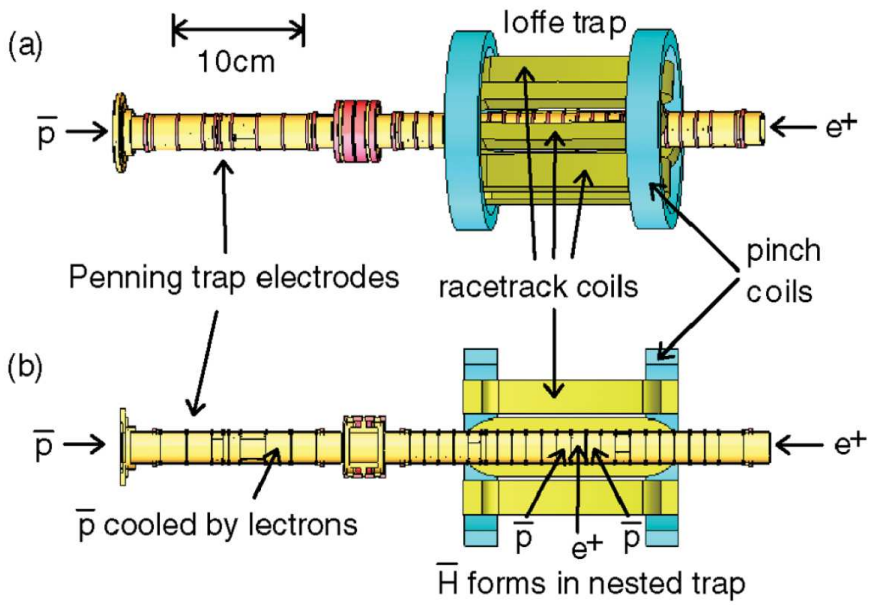

Abbildung 1.2: Außenansicht (a) und Schnitt (b) der in [GLS+08] verwendeten Kombination aus Penning- und Ioffefalle. *Innen befinden sich die zylindrischen Ring-Elektroden. Diese befinden sich auf unterschiedlichen Gleichspannungspotentialen, um mit dem 1 T starken, entlang der Symmetrieachse ausgebildeten, Magnetfeld eines hier nicht gezeigten Solenoiden Penningfallen für die geladenen Teilchen zu bilden. Die axialen und radialen Magnetfelder der verwendeten Quadrupol-Ioffefalle werden von den beiden sogenannten Pinch-Spulen und den vier Racetrack-Spulen erzeugt.*

wasserstoffatome gespeichert werden sollen, verbreitert und verschiebt die Spektrallinie des 1S – 2S-Übergangs [Ces01, Wal93, HZ93]. Gerade aufgrund dieser Verbreiterung des Übergangs wird es sehr wichtig sein die Antiwasserstoffatome zu kühlen, um die Ausdehnung der Teilchenwolke in der magnetischen Falle zu verringern.
Eine weitere Möglichkeit, die durch kalte Antiwasserstoffatome eröffnet werden könnte, ist die Untersuchung der gravitativen Wechselwirkung zwischen Materie und Antimaterie [NG91, NG92]. Prinzipiell wäre es auch möglich mit geladenen Teilchen Gravitationsexperimente durchzuführen. Diese werden jedoch durch die Wechselwirkung der geladenen Teilchen mit elektrischen Streufeldern extrem erschwert. Eine Elementarladung in 10 cm Entfernung bewirkt eine Kraft auf ein Proton, die so groß ist, wie die Gravitationskraft der gesamten Erde auf das Proton. Eine Beschreibung der sich daraus ergebenden Probleme ist in [DROM92] nachzulesen. Neutrale Antiwasserstoffatome könnten einen solchen Test der Materie-Antimaterie-Gravitation hingegen ermöglichen, so sie zu tiefen Temperaturen gekühlt sind, um ihre „Fallhöhe“ und damit die Größe des Experiments zu beschränken [WH04, Gab88].

Mit dem Aufbau aus [GLS+08] können Antiwasserstoffatome im Grundzustand mit einer Temperatur von bis zu 375 mK gefangen werden. Diese Antiwasserstoffatome

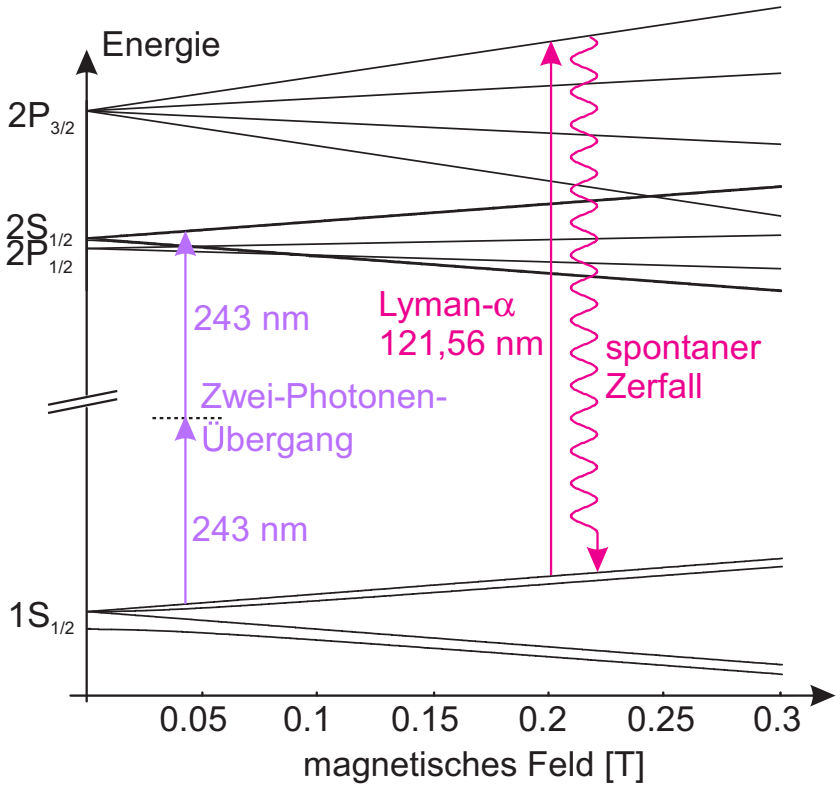

Abbildung 1.3: Zeemanaufspaltung der elektronischen Niveaus von (Anti)wasserstoff im Magnetfeld. Eingezeichnet sind auch der Zwei-Photonen-Übergang für die Präzisionsspektroskopie und der Lyman-α-Übergang. Dieser kann sowohl zur Laserkühlung als auch zur Shelving-Spektroskopie genutzt werden.

könnten dann, über ihren starken 1S – 2P-Übergang, dem Lyman-α-Übergang, durch Laserkühlung zu noch tieferen Temperaturen gekühlt werden (Abbildung 1.3). Die natürliche Linienbreite dieses Übergangs von $\Delta\nu_N = 99{,}7\,\mathrm{MHz}$ führt beim Kühlen zu einem Doppler-Limit von 2,4 mK. Aus der Energie der Lyman-α-Photonen mit einer Wellenlänge von 121,56 nm und der Masse der (Anti)wasserstoffatome folgt ein absolutes Rückstoss-Limit von 1,3 mK [PRL+93]. Ein geschlossener Zyklus, welcher benötigt wird um effizientes Laserkühlen betreiben zu können und um eine Kopplung an nicht gespeicherte magnetische Unterniveaus zu vermeiden, existiert zwischen den Zuständen $1S_{1/2}(m_J = 1/2)$ und $2P_{3/2}(m_J = 3/2)$.

Über die Jahre wurden viele gepulste Lyman-α-Quellen demonstriert [MIK78, HW83, MSM+90, PRL+93, MF98]. Mit einer solchen gepulsten Quelle war es sogar möglich magnetisch gespeicherten Wasserstoff bis zu einer Temperatur von 8 mK hinunter zu kühlen [SWL+93]. Allerdings haben kontinuierliche gegenüber gepulsten Lyman-α-Quellen klare Vorteile. Ihre viel schmalere Bandbreite führt zu einer besseren Selektierung der magnetischen Unterniveaus, was Verluste von Antiwasserstoffatomen durch Verlassen des geschlossenen Kühlzyklus verringert. Des Weiteren kann mit kontinuierlichen Quellen wesentlich effizienter gekühlt werden, weil sie nicht durch die niedrige Pulswiederholrate der gepulsten Hochleistungslaser beschränkt sind, wodurch auch die

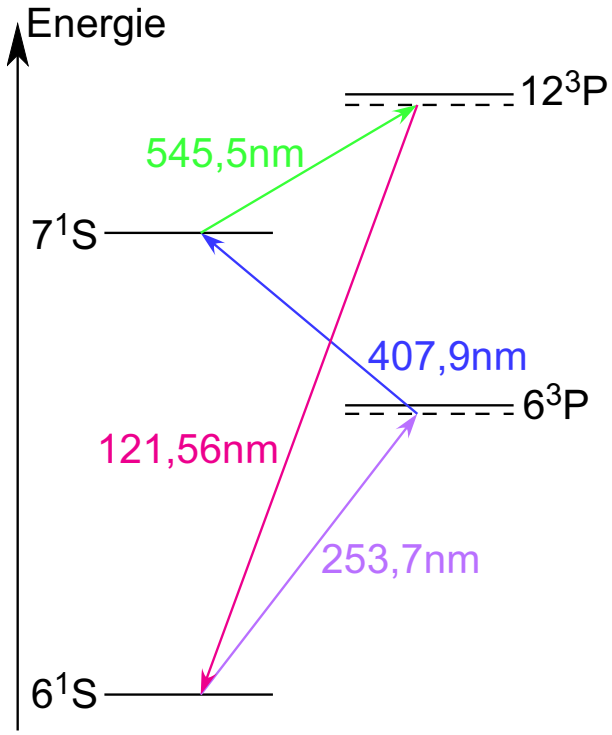

Abbildung 1.4: Vereinfachtes Energieleveldiagramm von Quecksilber. Eingetragen sind die, zum Vier-Wellen-Mischen verwendeten, fundamentalen Laser und die erzeugte Strahlung bei Lyman-α.

Sättigung des Kühlübergangs umgangen werden kann. Auch eine Präzisionsspektroskopie am schwachen 1S – 2S-Übergang mit sehr wenigen Antiwasserstoffatomen ist mit einer solchen Quelle möglich. Zur Detektion einer erfolgreichen Anregung des Spektroskopieübergangs kann hier die Fluoreszenz des starken 1S – 2P-Übergangs im Sinne eines sogenannten „shelving"-Schemas genutzt werden [Deh75].
Im Jahr 1999 wurde von Eikema, Walz und Hänsch die erste kontinuierliche kohärente Lyman-α-Quelle vorgestellt [EWH99]. Die Strahlung bei 121,56 nm wurde hierbei über Vier-Wellen-Mischen in Quecksilberdampf unter Ausnutzung der 6^1S – 7^1S-Zwei-Photonen-Resonanz des Quecksilbers erzeugt. In der Folgezeit konnte die Ausgangsleitung dieser Quelle von anfänglich 0,5 nW auf 20 nW erhöht werden [EWH01, PFH$^+$05], was beinahe der mittleren Leistung der zum Laserkühlen benutzen Quelle aus [SWL$^+$93] entsprach. Mit diesem Licht konnte der 1S – 2P-Übergang in Wasserstoff zum ersten Mal mit nahezu natürlicher Linienbreite spektroskopiert und so zusätzlich die Bandbreite der Lyman-α-Quelle zu etwa 10 MHz bestimmt werden.

Im Rahmen dieser Arbeit wird eine kontinuierliche Lyman-α-Quelle der zweiten Generation vorgestellt, welche im Gegensatz zum früheren Aufbau [EWH01] rein auf Festkörperlasern basiert. Auch hier wird mit Vier-Wellen-Mischen in Quecksilber gearbeitet, wobei es mit dieser neuen Quelle zum ersten Mal möglich ist, neben dem 6^1S – 7^1S-Zwei-Photonen-Übergang, auch den 6^1S – 6^3P-Ein-Photonen-Übergang zur

Erhöhung der Konversionseffizienz optimal auszunutzen (Abbildung 1.4).
Zu Beginn dieser Arbeit wird das theoretische Fundament für die Berechnung der im Vier-Wellen-Misch-Prozesses erzeugten Lyman-α-Leistung gelegt. Dabei wird unter anderem der Integralgleichungsformalismus [LHW87] zur Berechnung der Phasenanpassungsfunktion vorgestellt, mit dem es möglich ist viele Einflüsse des Experiments, wie zum Beispiel die Absorption eines fundamentalen Laserstrahls durch den Quecksilberdampf oder ein realistisches Dichteprofil des Quecksilbers, mit in die Rechnung einzubeziehen.
Nach der Theorie wird näher auf die Detektion einzelner Photonen mit einem Photomultiplier eingegangen. Ein gewissenhafter Umgang mit der Detektion ist dringend nötig, um das erzeugte Licht zuverlässig zu detektieren und um eine gute Abschätzung der erzeugten Leistung bei Lyman-α angeben zu können. Aus denselben Gründen ist es auch wichtig die Transmissivität verschiedener optischer Elemente bei 121,56 nm zu kennen, die in der Lyman-α-Apparatur verwendet werden. Ein Teststand, der zur Messung dieser Transmissivität aufgebaut wurde, wird deshalb im Anschluss an die Einzelphotonendetektion beschrieben.
Es folgt dann der Aufbau der Lyman-α-Quelle selbst. Hierzu gehören die fundamentalen Lasersysteme und deren Charakterisierung, die Überlagerung der fundamentalen Strahlen, sowie die Quecksilberdampfzelle und die Lyman-α-Erzeugung mit der Detektion der erzeugten Strahlung und der Aufnahme weiterer Daten zur Analyse des Vier-Wellen-Misch-Prozesses.
Mit dieser neuen Quelle wird erfolgreich Strahlung bei 121,56 nm erzeugt und es wurden erste Messungen zur Effizienz des Vier-Wellen-Mischens, insbesondere erstmalig ein Scan über die komplette Phasenanpassungskurve des Prozesses, durchgeführt. Die erzielten Ergebnisse werden hier im Einzelnen besprochen.
Im Rahmen dieser Arbeit wurden, auf Basis der zu Beginn vorgestellten Theorie, detaillierte Rechnungen zur Effizienz der Lyman-α-Erzeugung und zur Form und Lage der Phasenanpassungskurve in Abhängigkeit verschiedenster Einflüsse durchgeführt. Die Rechnungen werden am Ende der Arbeit vorgestellt und mit der gemessenen Phasenanpassungskurve verglichen.

Kapitel 2

Theorie

Diese Arbeit ist im cgs-Einheitensystem geschrieben, außer es wird explizit auf die Verwendung anderer Einheiten hingewiesen. Einmal eingeführte mathematische Symbole haben in der gesamten Arbeit dieselbe Bedeutung (siehe auch Anhang E)

2.1 Polarisation eines isotropen Mediums durch drei Laserfelder

Propagiert Licht durch ein Medium, so induziert das elektrische Feld $\mathbf{E}(\mathbf{r},t)$ des Lichts am Ort $\mathbf{r}$ zur Zeit t ein Dipolmoment in den Atomen des Mediums. Das gesamte Dipolmoment aller Atome pro Einheitsvolumen wird als Polarisation $\mathbf{P}(\mathbf{r},t)$ bezeichnet. Diese lässt sich in den meisten Fällen[1], und auch für die in dieser Arbeit behandelte Situation des Vier-Wellen-Mischens, als Potenzreihe der elektrischen Feldstärke $\mathbf{E}(\mathbf{r},t)$ schreiben [Boy03].

$$\begin{aligned}\mathbf{P}(\mathbf{r},t) &= \boldsymbol{\chi}^{(1)}\,\mathbf{E}(\mathbf{r},t) + \boldsymbol{\chi}^{(2)}\,\mathbf{E}^2(\mathbf{r},t) + \boldsymbol{\chi}^{(3)}\,\mathbf{E}^3(\mathbf{r},t) + \cdots \\ &\equiv \mathbf{P}^{(1)}(\mathbf{r},t) + \mathbf{P}^{(2)}(\mathbf{r},t) + \mathbf{P}^{(3)}(\mathbf{r},t) + \cdots\end{aligned} \tag{2.1}$$

$\boldsymbol{\chi}^{(i)}$ sind Tensoren $i+1$ter Ordnung. $\boldsymbol{\chi}^{(1)}$ ist der lineare Suszeptibilitätstensor und $\boldsymbol{\chi}^{(i)}$ mit $i \geq 2$ sind die nichtlinearen Suszeptibilitätstensoren. Ihr Betrag hängt vom (nichtlinearen) Medium und den eingestrahlten Laserfrequenzen ab (siehe auch Kapitel 2.4 und 2.5).
Gase, die in dieser Arbeit zur Frequenzkonversion benutzt werden, sind isotrope Medien. Aus Symmetriegründen müssen alle $\boldsymbol{\chi}^{(i)}$ mit geradem i in isotropen Medien gleich Null sein [Boy03]. Des Weiteren kann hier der lineare Suszeptibilitätstensor $\boldsymbol{\chi}^{(i)}$ als Skalar behandelt werden weil es keinen Grund gibt, dass die Antwort eines isotropen Mediums auf eine Anregung zum Beispiel in die x-Richtung, in die $+y$-Richtung anstatt in die $-y$-Richtung geht und die Antwort deshalb nur eine x-Komponente haben

[1] Ein Beispiel, für das diese Potenzreihe nicht mehr konvergiert und das somit auch nicht mehr mit Hilfe dieser Potenzreihe beschrieben werden kann, ist das eines sättigbaren Absorbers [Boy03].

kann[2]. Sind beim Vier-Wellen-Misch-Prozess in Gasen, wie in dieser Arbeit, alle Laser linear in die gleiche Richtung polarisiert, kann mit dem gleichen Argument auch $\boldsymbol{\chi}^{(3)}$ als Skalar behandelt werden. Des Weiteren sind Beiträge von Prozessen mit Ordnungen $i \geq 5$ bei den uns zur Verfügung stehenden Laserintensitäten im Fokus vernachlässigbar [Rei84].
Es werden im Folgenden also nur lineare ($\chi^{(1)}$) und nichtlineare Prozesse dritter Ordnung, sogenannte $\chi^{(3)}$-Prozesse betrachtet.
$\chi^{(1)}$ ist mit dem komplexen, lichtintensitätsunabhängigen Brechungsindex über folgende Relation verknüpft:

$$n = \sqrt{1 + 4\pi\,\chi^{(1)}} \approx 1 + 2\pi\,\chi^{(1)} \tag{2.2}$$

Den letzten Ausdruck erhält man, wenn man ein ausreichend verdünntes Medium annimmt, so dass $4\pi\,\chi^{(1)} \ll 1$ gilt. Der reelle Brechungsindex n' und der Absorptionskoeffizient α des Mediums hängen dann über die folgenden beiden Relationen mit der linearen Suszeptibilität zusammen [Boy03]:

$$n' = \mathrm{Re}[n] = 1 + 2\pi\,\mathrm{Re}[\chi^{(1)}] \tag{2.3}$$

$$\alpha = 2\,\mathrm{Im}[n]\,\omega/c = 4\pi\,\mathrm{Im}[\chi^{(1)}]\,\omega/c \tag{2.4}$$

ω ist die Winkelgeschwindigkeit der elektromagnetischen Welle und c die Vakuumlichtgeschwindigkeit.
Strahlt man drei Lichtfelder mit drei verschiedenen Frequenzen ein, so wird das gesamte, daraus resultierende Lichtfeld aus der Summe dieser drei Lichtfelder gebildet.

$$\begin{aligned}\mathbf{E}(\mathbf{r},t) &= \mathbf{E}_1(\mathbf{r})\cos(\omega_1 t) + \mathbf{E}_2(\mathbf{r})\cos(\omega_2 t) + \mathbf{E}_3(\mathbf{r})\cos(\omega_3 t) \\ &= \frac{1}{2}\left[\mathbf{E}_1(\mathbf{r})e^{-i\,\omega_1 t} + \mathbf{E}_2(\mathbf{r})e^{-i\,\omega_2 t} + \mathbf{E}_3(\mathbf{r})e^{-i\,\omega_3 t} + \text{c.c.}\right]\end{aligned} \tag{2.5}$$

$\mathbf{E}_i(\mathbf{r})$ sind die Amplituden der jeweiligen Lichtfelder in Abhängigkeit vom Ort, ω_i deren Winkelfrequenzen und c.c. bezeichnet den komplex konjugierten Beitrag. Berechnet man nun $\mathbf{E}(\mathbf{r},t)^3$, so enthält das Ergebnis sechs identische Terme, in denen die Summe der drei unterschiedlichen Winkelgeschwindigkeiten enthalten ist sowie deren komplex Konjugierten und es gilt:

$$\mathbf{E}^3(\mathbf{r},t,\omega_1+\omega_2+\omega_3) = \frac{1}{8}\left[6\,\mathbf{E}_1(\mathbf{r})\mathbf{E}_2(\mathbf{r})\mathbf{E}_3(\mathbf{r})e^{-i(\omega_1+\omega_2+\omega_3)t} + \text{c.c.}\right]. \tag{2.6}$$

Die nichtlineare Polarisation dritter Ordnung $\mathbf{P}^{(3)}(\mathbf{r},t)$ kann als Summe ihrer Fourierkomponenten $\mathbf{P}^{(3)}(\mathbf{r},\omega_j)$ geschrieben werden

$$\mathbf{P}^{(3)}(\mathbf{r},t) = \frac{1}{2}\sum_j \mathbf{P}^{(3)}(\mathbf{r},\omega_j)e^{-i\,\omega_j t} \tag{2.7}$$

[2]In Medien ohne Zentrosymmetrie, wie etwa in bestimmten Kristallen ist dies nicht der Fall, was dann zu Doppelbrechung führt.

wobei hier die komplex konjugierten Werte schon in der Summation enthalten sind, da über positive und negative Frequenzen summiert wird. Wegen des Zusammenhangs

$$\mathbf{P}^{(3)}(\mathbf{r},t) = \chi^{(3)}\mathbf{E}^3(\mathbf{r},t) \tag{2.8}$$

aus Gleichung 2.1 und wegen Gleichung 2.5 muss für ω_j die Bedingung

$$\omega_j = \pm\omega_k \pm \omega_l \pm \omega_m\,; \qquad k,l,m \in \{1,2,3\} \tag{2.9}$$

gelten. Vergleicht man mit diesem Wissen Gleichungen 2.6 und 2.7, so erkennt man, dass die Komponente der Polarisation, die für das hier realisierte Summen-Frequenz-Mischen verantwortliche ist, gleich

$$\begin{aligned}\mathbf{P}^{(3)}(\mathbf{r},\omega_1+\omega_2+\omega_3) &= \frac{3}{2}\,\chi^{(3)}\prod_{j=1}^{3}\mathbf{E}(\mathbf{r},\omega_j) \\ &= \frac{3}{2}\,N(\mathbf{r})\,\chi_a^{(3)}\prod_{j=1}^{3}\mathbf{E}(\mathbf{r},\omega_j)\end{aligned} \tag{2.10}$$

ist. $\mathbf{E}(\mathbf{r},\omega_j)$ sind die Fourierkomponenten der fundamentalen elektrischen Felder. An dieser Stelle wurde bereits die nichtlineare Suszeptibilität dritter Ordnung pro Atomdichte $\chi_a^{(3)}$ und die Teilchenzahldichte $N(\mathbf{r})$ eingeführt um die Abhängigkeit von $N(\mathbf{r})$ aus der nichtlinearen Suszeptibilität herauszunehmen.

2.2 Berechnung der konvertierten Leistung beim Vier-Wellen-Mischen nach Bjorklund

Wie im letzten Abschnitt schon angedeutet, erzeugt die induzierte Polarisation selbst wieder eine elektromagnetische Welle [BW75]. Das Vier-Wellen-Mischen ist ein kohärenter Prozess, somit hat die am Ort $\mathbf{r}$ erzeugte Welle eine feste Phasenbeziehung zu den fundamentalen Wellen am selben Ort. Im Allgemeinen addieren sich die an unterschiedlichen Orten erzeugten Teilwellen nicht konstruktiv, einerseits wegen der unterschiedlichen Dispersion aller vier elektromagnetischen Wellen im Gas und andererseits wegen der Gouy-Phase, die jeder fokussierte Laserstrahl beim Durchgang durch seinen Fokus akkumuliert. Zur Berechnung der konvertierten Leistung kann also nicht einfach die an jedem Ort erzeugte Leistung über das gesamte Volumen aufaddiert werden.
Bjorklund [Bjo75] berechnet die beim Vier-Wellen-Mischen mit fokussierten Gaußstrahlen erzeugte Leistung indem er zunächst die räumliche Änderung des treibenden Anteils der induzierten Polarisation berechnet - für das Summenfrequenzmischen entspricht dies also $\mathbf{P}^{(3)}(\mathbf{r},\omega_1+\omega_2+\omega_3)$. Danach wird diese räumliche Polarisation fourierzerlegt, und so als ebene Wellen dargestellt. Dann wird das von jeder dieser ebenen Polarisationswellen erzeugte elektrische Feld berechnet. Zum Schluss integriert er über alle

Beiträge aller dieser Fourierkomponenten an einem Beobachtungspunkt $\mathbf{r}'$ und erhält so das gesamte erzeugte elektrische Feld $\mathbf{E}_4(\mathbf{r})$. Die erzeugte Leistung lässt sich nun noch über eine Integration des Betragsquadrates des elektrischen Feldes über die Beobachtungsebene berechnen (siehe auch Kapitel 2.3), wodurch Bjorklund zu der folgenden Gleichung gelangt:

$$P_4 = (6{,}318 \times 10^{-4}) \frac{k_0^4 k_1 k_2 k_3}{k_4^2 k'} N^2 \left|\chi_a^{(3)}\right|^2 P_1 P_2 P_3 F^{(3)} \tag{2.11}$$

mit

$$k' = k_1 + k_2 + k_3 \tag{2.12}$$

und N der Teilchendichte des nichtlinearen Mediums. P_4 und P_1, P_2, P_3 bezeichnen die erzeugte und die fundamentalen Leistungen in Watt. Alle anderen Größen sind in cgs-Einheiten gegeben. Dabei sind k_4 und k_1, k_2, k_3 die Wellenvektoren ($k = 2\pi/\lambda$) des erzeugten und der fundamentalen Strahlen im Medium und k_0 ist der Wellenvektor des erzeugten Lichts im Vakuum. $F^{(3)}$ ist eine dimensionslose Phasenanpassungsfunktion, die es zu maximieren gilt:

$$F^{(3)} = \left| \int_{-\xi}^{\epsilon'} \frac{\exp\left[-\left(ib/2\right)\Delta k \epsilon\right]}{\left(1 + i\epsilon\right)^2} d\epsilon \right|^2 \tag{2.13}$$

mit

$$\xi = \frac{2z_0}{b}\,, \qquad \epsilon = \frac{2(z - z_0)}{b} \qquad \text{und} \qquad \epsilon' = \frac{2(z' - z_0)}{b}\,. \tag{2.14}$$

z ist die Position, z' der Beobachtungspunkt, und z_0 die Position des Fokus entlang der z-Achse. Des Weiteren sind b der konfokale Parameter und Δk die sogenannte Fehlanpassung der Wellenvektoren.

$$\Delta k = k_4 - k' \tag{2.15}$$

Befindet man sich mit der Beobachtungsebene nicht innerhalb des nichtlinearen Mediums, sondern betrachtet man die erzeugte Leistung hinter einer, mit dem nichtlinearen Medium gefüllten Zelle der Länge L, so ist z' gleich der Zellenlänge L zu setzen.
Im Limit starker Fokussierung, in dem $b \ll L$ ist und sich die gesamte Region des Fokus in der Zelle befindet (ϵ', $\xi \to \infty$), kann $F^{(3)}$ zu

$$F^{(3)}_{tightfocus} = F^{(3)}_{tf} = \begin{cases} \pi^2 (b\Delta k)^2 \exp\left(b\Delta k\right) & , \quad \Delta k < 0 \\ 0 & , \quad \Delta k \geq 0 \end{cases} \tag{2.16}$$

berechnet werden. $F^{(3)}_{tf}$ ist also nur noch von der dimensionslosen Größe $b\Delta k$ abhängig (Abbildung 2.1 a). In Kapitel 2.4 wird gezeigt, dass Δk und damit auch $b\Delta k$ proportional zur Dichte N der Atome des nichtlinearen Mediums ist solange kein anderes Medium einen signifikanten Anteil zu Δk beiträgt. Wird also der Parameter $b\Delta k$ über eine Änderung von N eingestellt[3], so ist es sinnvoll die Abhängigkeit der erzeugten

[3] Andere Möglichkeiten wären zum Beispiel $b\Delta k$ über den Parameter b zu ändern oder ein weiteres Gas zur Änderung von Δk zu benutzen, das nicht zum Vier-Wellen-Misch-Prozess beiträgt.

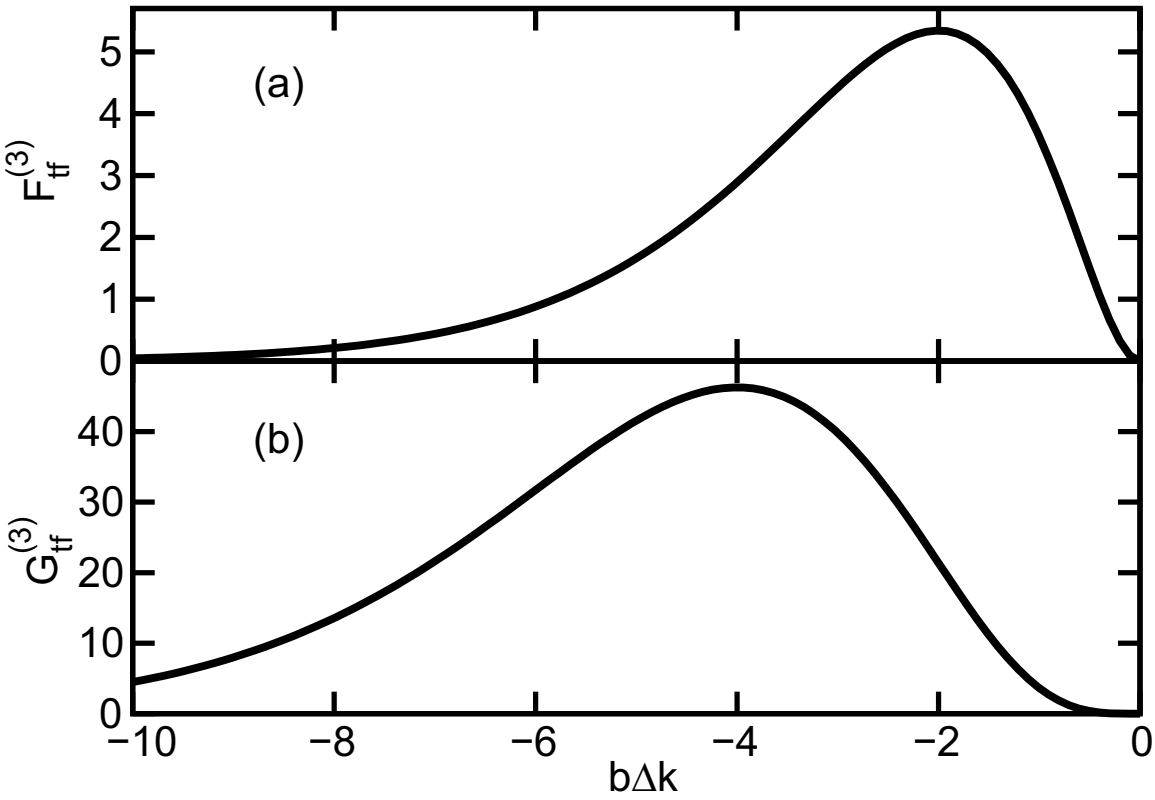

Abbildung 2.1: Phasenanpassungsfunktionen nach Bjorklund. *(a) Phasenanpassungsfunktion $F_{tf}^{(3)}$ mit einem Maximum von* 5,34 *bei* $b\Delta k = -2$*. (b) Phasenanpassungsfunktion $G_{tf}^{(3)}$ mit einem Maximum von* 46,3 *bei* $b\Delta k = -4$*.*

Leistung von der Atomdichte noch in die zu maximierende Phasenanpassungsfunktion hinein zu ziehen:

$$P_4 = (6{,}318 \times 10^{-4}) \, \frac{k_0^4 k_1 k_2 k_3}{k_4^2 k'} (Cb)^{-2} \left|\chi_a^{(3)}\right|^2 P_1 P_2 P_3 \, G^{(3)} \,, \tag{2.17}$$

$$G^{(3)} = (b\Delta k)^2 \, F^{(3)} \,. \tag{2.18}$$

Die Größe C in Gleichung 2.17 ist eine wellenlängenabhängige Proportionalitätskonstante zwischen Δk und N

$$\Delta k = C(\lambda_1, \lambda_2, \lambda_3, \lambda_4) N \,. \tag{2.19}$$

Ihre Berechnung wird in Kapitel 2.4 beschrieben.
Der Verlauf von $G_{tf}^{(3)}$, also der Verlauf von $G^{(3)}$ in der Näherung hart fokussierter Strahlen, ist in Abbildung 2.1 b dargestellt. Damit gilt also nach Bjorklund: Die konvertierte Leistung P_4 kann maximiert werden, indem der b-Parameter der fundamentalen Strahlen möglichst klein gewählt wird und die Dichte der nichtlinearen Atome dann so eingestellt wird, dass $G^{(3)}$ maximal wird, was im Limit starker Fokussierung $b\Delta k = b\,CN = -4$ der Fall ist.
Allerdings gehen in die Rechnung von Bjorklund eine Reihe von vereinfachenden Annahmen ein:

1. Die eingehenden Strahlen sind kollineare, in z-Richtung propagierende Gaußstrahlen.

2. Sie sind linear und in die gleiche Richtung polarisiert.

3. Sie haben gleiche Konfokalparameter und identische Fokuspositionen.

4. Es findet keine Absorption der fundamentalen und des erzeugten Laserstrahls statt.

5. Die Anzahldichte $N(z)$ der Atome des nichtlinearen Mediums hat in der Ausbreitungsrichtung der Laserstrahlen z folgenden Verlauf:

$$N(z) = \begin{cases} N & , \quad z > 0 \\ 0 & , \quad z < 0 \end{cases} \tag{2.20}$$

Kommt man jedoch mit den Frequenzen der Laser in die Nähe atomarer Resonanzen des nichtlinearen Mediums, so ist die Annahme aus Punkt 4. nicht mehr gültig und die von Bjorklund hergeleitete Beziehung kann nicht mehr verwendet werden. Weil der Laser bei 253,7 nm zur Erhöhung der nichtlinearen Suszeptibilität (siehe Kapitel 2.5.1) beliebig nahe an die $6^1\mathrm{S}$ – $6^3\mathrm{P}$-Resonanz in Quecksilber herangebracht werden kann, muss hier die Absorption dieses fundamentalen Laserstrahls mitberücksichtigt werden. Aber auch die Dichteverteilung des Quecksilberdampfes in unserer Zelle und vor allem der Abfall am Rand der zentralen Erzeugungsregion sind uns nicht bekannt, so dass zunächst nicht von einer Dichteverteilung, wie sie in Punkt 5. angenommen wurde, ausgegangen werden kann.
Lago et al. [LHW87, Lag87] berechnen die erzeugte Leistung auf anderem Wege, und bekommen eine allgemeinere Funktion, in die sie von obigen Annahmen nur noch die Punkte 1. und 2. eingehen lassen, aber eben nicht mehr die Punkte 4. und 5. Sie benutzen den sogenannten Integralgleichungsformalismus, der von Bloembergen und Pershan [BP62] vorgeschlagen wurde und zum Beispiel von Franken und Ward [FW63] benutzt wurde um die Zweite-Harmonische-Erzeugung mit ebenen Wellen in nichtlinearen Kristallen zu berechnen. Im Folgenden soll nun näher vorgestellt werden, wie man mit diesem Integralgleichungsformalismus die durch den nichtlinearen Prozess erzeugte Leistung, bei freier Wahl der Konfokalparameter, der Fokuspositionen, der Dichteverteilung des nichtlinearen Mediums und unter Berücksichtigung von Absorption, berechnen kann. Weil für diese Arbeit nur der Spezialfall des Vier-Wellen-Mischens von Interesse ist, soll das Problem auch von Anfang an auf diesen Spezialfall reduziert werden. Eine Herleitung für den allgemeinen Fall von Wellen-Mischens beliebig hoher Ordnung folgt jedoch demselben Weg und bringt keine weiteren Probleme mit sich [LHW87, Lag87].

2.3 Der Integralgleichungsformalismus

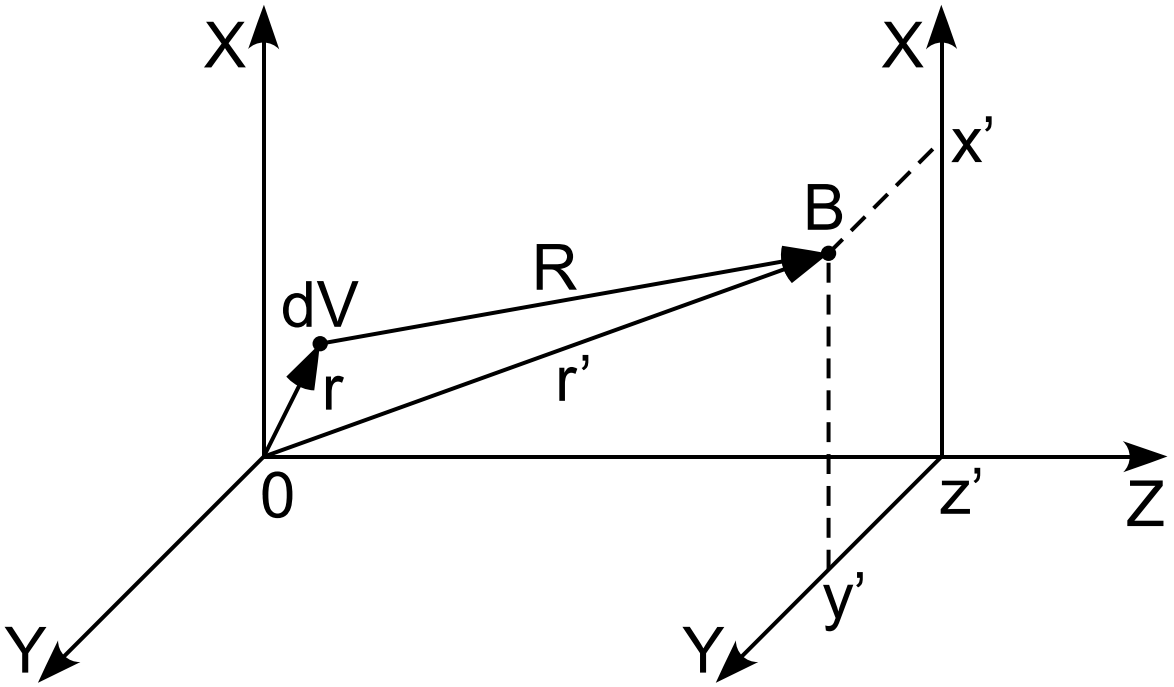

Abbildung 2.2: Definition des Koordinatensystems.

Das elektrische Feld, das von einer beliebigen Polarisation $\mathbf{P}(\mathbf{r}, t)$ erzeugt wird, wird durch die Integralgleichung

$$\mathbf{E}(\mathbf{r}', t) = \int_V \nabla \times \nabla \times \frac{[\mathbf{P}(\mathbf{r}, t)]_{\text{ret}}}{R}\, dV \tag{2.21}$$

beschrieben [BW75]. Die eckigen Klammern mit dem Index „ret“ deuten an, dass hier der retardierte Wert der Polarisation verwendet werden muss. R ist die Entfernung zwischen dem Volumenelement dV im nichtlinearen Medium am Punkt $\mathbf{r} = (x, y, z)$ und dem Beobachtungspunkt $\mathbf{r}' = (x', y', z')$ (Abbildung 2.2). Nach dieser Gleichung kann das erzeugte elektrische Feld am Ort $\mathbf{r}'$ berechnet werden durch die Überlagerung aller Komponenten der Dipolstrahlung, die von der Polarisation $\mathbf{P}$ in allen Volumenelementen dV des nichtlinearen Mediums erzeugt werden.
Die folgenden Überlegungen beschränken sich auf gasförmige Medien [LHW87]. $\mathbf{E}(\mathbf{r}', t)$ soll an einem Punkt außerhalb des nichtlinearen Mediums berechnet werden. Da das Integral nun über das gesamte nichtlineare Medium ausgeführt wird, können nach Born und Wolf [BW75] die Integration und der Operator $\nabla \times \nabla$ in Gleichung 2.21 vertauscht werden.
Im Allgemeinen ist man nicht am gesamten erzeugten Feld, sondern nur an dem Feld bei einer bestimmten Frequenz ω_4 interessiert, die in einem bestimmten nichtlinearen Prozess von der Fourierkomponente der induzierten Polarisation $\mathbf{P}^{(3)}(\mathbf{r}, \omega_4)$ erzeugt wird. In dieser Arbeit ist diese Frequenz ω_4 die Summenfrequenz der drei eingestrahlten Lichtfelder $\omega_1 + \omega_2 + \omega_3 = \omega_4$.

Es gilt also

$$\mathbf{E}_4(\mathbf{r}',t) = \nabla \times \nabla \times \int_V \frac{\mathbf{P}^{(3)}(\mathbf{r},\omega_4)}{R} \times \exp\left[-i\omega_4\left(t-\frac{l}{c}\right)\right] dV \tag{2.22}$$

mit

$$\begin{aligned}[\mathbf{P}^{(3)}(\mathbf{r},t,\omega_4)]_{\text{ret}} &= [\mathbf{P}^{(3)}(\mathbf{r},\omega_4) \times \exp(-i\omega_4 t)]_{\text{ret}} \\ &= \mathbf{P}^{(3)}(\mathbf{r},\omega_4) \times \exp\left[-i\omega_4\left(t-\frac{l}{c}\right)\right].\end{aligned} \tag{2.23}$$

l ist die optische Weglänge zwischen den Punkten $\mathbf{r}$ und $\mathbf{r}'$ und c die Lichtgeschwindigkeit im Vakuum.
Nach Kapitel 2.1 Gleichung 2.10 kann $\mathbf{P}^{(3)}(\mathbf{r},\omega_4)$ für den Prozess $\omega_1+\omega_2+\omega_3 \rightarrow \omega_4$ in Abhängigkeit der fundamentalen Laserfelder durch die Gleichung

$$\mathbf{P}^{(3)}(\mathbf{r},\omega_4) = \frac{3}{2} N(\mathbf{r})\, \chi_a^{(3)} \prod_{j=1}^{3} \mathbf{E}_j(\mathbf{r},\omega_j) \tag{2.24}$$

dargestellt werden.
Zur Vereinfachung der Berechnung wird angenommen, dass das einfallende Laserlicht aus Gaußstrahlen niedrigster Ordnung besteht, die kollinear entlang der z-Achse propagieren. Ihre Konfokalparameter werden mit b_j und ihre Wellenvektoren mit k_j bezeichnet. Ihre Foki befinden sich an den Positionen $z_{0,j}$. Hiermit lassen sich ihre elektrischen Felder als

$$\mathbf{E}_j(\mathbf{r},t) = \mathbf{E}_{0,j} \frac{\exp\left[-\frac{k_j\left(x^2+y^2\right)}{b_j(1+i\epsilon_j)}\right]}{1+i\epsilon_j} \times \exp\left[i\int_{-\infty}^{z} k_j\left(z''\right) dz'' - i\omega_j t\right] \tag{2.25}$$

mit

$$\epsilon_j = \frac{2}{b_j}\left(z - z_{0,j}\right) \tag{2.26}$$

schreiben [Bjo75, LHW87, Lag87]. $\mathbf{E}_{0,j}$ sind die Amplituden der elektrischen Feldstärken im Fokus auf der z-Achse. Weil über den Brechungsindex angenommen wird, dass er eine Funktion von z ist, sind die Phasenfaktoren $U_j = \exp\left(ik_j z\right)$ in Gleichung 2.25 durch eine verallgemeinerte Form ersetzt worden

$$U_j = \exp\left[i\int_{-\infty}^{z} k_j\left(z''\right) dz''\right]. \tag{2.27}$$

Nun kann mit Gleichungen 2.25 und 2.24 die induzierte Polarisation $\mathbf{P}^{(3)}(\mathbf{r},\omega_4)$ zu

$$\begin{aligned}\mathbf{P}^{(3)}(\mathbf{r},\omega_4) = \frac{3}{2} N(\mathbf{r})\, \chi_a^{(3)} \left(\prod_{j=1}^{3} \mathbf{E}_{0,j}\right) \exp\left[-\frac{f(z)}{g(z)}\left(x^2+y^2\right)\right] \frac{1}{g(z)} \\ \times \exp\left[i\int_{-\infty}^{z} k_j\left(z''\right) dz''\right]\end{aligned} \tag{2.28}$$

bestimmt werden. Hierfür wurden die Größen $f(z)$ und $g(z)$ neu eingeführt, in denen alle Strahlparameter der fundamentalen Laserstrahlen zusammengefasst wurden:

$$f(z) = \sum_{s=1}^{3} \frac{k_s}{b_s} \prod_{\substack{j=1 \\ j\neq s}}^{3} (1 + i\epsilon_j) \tag{2.29}$$

$$g(z) = \prod_{j=1}^{3} (1 + i\epsilon_j) \tag{2.30}$$

Wie schon bei den fundamentalen Lichtstrahlen, wird auch der Phasenfaktor für das erzeugte Licht $U_4 = \exp\left[i\omega_4 \left(l/c\right)\right]$ verallgemeinert durch

$$U_4 = \exp\left(i\frac{\omega_4}{c}\int_{\mathbf{r}}^{\mathbf{r}'} dl\right), \tag{2.31}$$

wobei ausgenutzt wurde, dass die optische Länge über ein Integral entlang einer geraden Linie zwischen den Punkten $\mathbf{r}$ und $\mathbf{r}'$ berechnet werden kann [LHW87]. Mit der Fernfeldnäherung, in der alle Terme, die mit $1/R$ in einer Ordnung > 1 gehen, vernachlässigt werden und in der man $(z' - z) \approx R$ setzen kann, da die Laserstrahlen entlang der z-Achse propagieren, kann das Linienintegral durch die folgende Gleichung angenähert werden:

$$\begin{aligned}\frac{\omega_4}{c}\int_{\mathbf{r}}^{\mathbf{r}'} dl &\approx \left[1 + \frac{1}{2}\left(\frac{x'-x}{z'-z}\right)^2 + \frac{1}{2}\left(\frac{y'-y}{z'-z}\right)^2\right]\int_z^{z'} k_4\left(z''\right) dz'' \\ &\approx \int_{-\infty}^{z'} k_4\left(z''\right) dz'' - \int_{-\infty}^{z} k_4\left(z''\right) dz'' + \frac{k_4}{2}\left[\frac{\left(x'-x\right)^2}{z'-z} + \frac{\left(y'-y\right)^2}{z'-z}\right]\end{aligned} \tag{2.32}$$

wobei k_4 der Wellenvektor der erzeugten Strahlung im nichtlinearen Medium ist.
Auch Lago et al. [LHW87] behandeln $\chi_a^{(3)}$ als Skalar (siehe auch Kapitel 2.1), wodurch der Operator $\nabla \times \nabla \times$ in Gleichung 2.22 durch den Ausdruck $-\omega_4^2/c^2 \sin(\theta)$ ersetzt werden kann und θ der Winkel zwischen $\mathbf{P}^{(3)}(\mathbf{r}, \omega_4)$ und dem Vektor $(\mathbf{r}' - \mathbf{r})$ ist. In der Fernfeldnäherung ist $\theta \approx \pi/2$ und damit $\sin(\theta) \approx 1$. Durch Einsetzen der Gleichungen 2.28 und 2.32 in Gleichung 2.22 und Integration über die x- und y-Koordinaten wird nun das erzeugte elektrische Feld zu

$$\begin{aligned}E_4(\mathbf{r}', t) = -3\pi i \chi_a^{(3)} \exp(i\phi) \exp(-i\omega_4 t) \left(\prod_{j=1}^{3} \mathbf{E}_{0,j}\right) k_4 \\ \times \int_{-\infty}^{\infty} N(z) \frac{\exp\left[-\left(x'^2 + y'^2\right) q(z, z')\right]}{a(z, z')} \exp\left[-i\int_{-\infty}^{z} \Delta k\left(z''\right) dz''\right] dz\end{aligned} \tag{2.33}$$

mit

$$\Delta k(z'') = k_4(z'') - k'(z''), \tag{2.34}$$

$$\phi = \int_{-\infty}^{z'} k_4(z'')dz'' \,, \tag{2.35}$$

$$a(z,z') = g(z) - i\frac{2\,(z-z')}{k_4} f(z) \,, \tag{2.36}$$

und

$$q\,(z,z') = \frac{f(z)}{a(z,z')} \tag{2.37}$$

berechnet. $\Delta k(z'')$ ist wieder die Fehlanpassung der Wellenvektoren der erzeugten und der treibenden Strahlung. Die Wellenvektorphasenfehlanpassung hängt mit der Gasdichte $N(z'')$ über $\Delta k(z'') = C(\lambda_1, \lambda_2, \lambda_3, \lambda_4)N(z'')$ zusammen (Kapitel 2.4). $\Delta k(z'')$ und $N(z'')$ haben also die gleiche räumliche Abhängigkeit. Für die Integration über die x und y wird angenommen, dass die Gasdichte im Bereich der Lichtstrahlen wenig variiert, so dass in guter Näherung ein konstanter Wert angenommen werden kann.
Die gesamte erzeugte Leistung P_4 erhält man nun noch, indem man über die Beobachtungsebene bei z' folgendes Integral über das Quadrat des elektrischen Feldes bildet:

$$P_4 = \frac{c}{8\pi} \int_0^\infty 2\pi r' \left|E_4\left(\mathbf{r}', t\right)\right|^2 dr' \,. \tag{2.38}$$

r' ist hier der Abstand von der z-Achse, also $r' = (x'^2 + y'^2)^{1/2}$. Für die normierte Dichteverteilung $S(z) = N(z)/N_0$ mit der maximalen Dichte N_0 ist die erzeugte Leistung durch die Beziehung

$$P_4 = \left(\frac{24\pi \times 10^7}{c}\right)^2 k_4 k_1 k_2 k_3 N_0^2 \left|\chi_a^{(3)}\right|^2 P_1 P_2 P_3 \, F^{(3)} \tag{2.39}$$

gegeben. $F^{(3)}$ ist wieder eine dimensionslose verallgemeinerte Phasenanpassungsfunktion

$$\begin{aligned} F^{(3)} =& 16 k_4 \left(\prod_{j=1}^{3} \frac{1}{b_j}\right) \int_0^\infty r' \\ & \times \left| \exp(i\phi) \int_{-\infty}^{\infty} \frac{S(z)}{a(z,z')} \exp\left[-r'^2 q(z,z')\right] \exp\left[-i\int_{-\infty}^{z} \Delta k(z'')dz''\right] dz \right|^2 dr' \end{aligned} \tag{2.40}$$

mit

$$\Delta k(z'') = S(z'')\Delta k_0 \,. \tag{2.41}$$

Δk_0 ist also die Phasenfehlanpassung bei der Dichte N_0. In die Gleichungen 2.38 und 2.40 sind alle Größen in cgs-Einheiten einzusetzen, außer den Leistungen P_1, P_2, P_3 und P_4, die in Watt einzusetzen sind.
Zu beachten ist, dass in den Gleichungen der Veröffentlichungen [LHW87, Lag87, HBLW88], die Gleichung 2.40 entsprechen, der Term $\exp(i\phi)$ nicht enthalten ist. Ohne Absorption der erzeugten Welle kann er auch vernachlässigt werden, da sein Betrag

dann immer gleich eins ist. Mit Absorption der erzeugten Welle hat dieser Term aber einen reellen Anteil ungleich eins und ist so nicht mehr zu vernachlässigen.
Möchte man Absorption der vier Wellen in die Rechnung mit einbeziehen, so sind bei Berechnung von $F^{(3)}$ im Betrag die reellen Wellenvektoren k_j durch die folgenden komplexen Wellenvektoren zu ersetzen [LHW87]:

$$\hat{k}_j = k_j + i\frac{\alpha_j}{2} = \frac{2\pi n'_j}{\lambda_{0,j}} + i\frac{\alpha_j}{2} \tag{2.42}$$

mit

$$\alpha_j = N(z)\sigma(\lambda_{0,j}); \qquad j = 1,2,3,4\,. \tag{2.43}$$

$\lambda_{0,j}$ ist die Wellenlänge des jeweiligen Lasers im Vakuum und $\sigma(\lambda_{0,j})$ der zugehörige Absorptionsquerschnitt eines Atoms. Dieser Zusammenhang, dass der Absorptionskoeffizient proportional zur Dichte der Atome ist, gilt allerdings nur, solange die Verbreiterung einer Spektrallinie mit steigendem N vernachlässigt werden kann (siehe Anhang C.4). In diesem Experiment kann der erste fundamentale Laser durch den $6^1\mathrm{S}$ – $6^3\mathrm{P}$-Übergang des Quecksilbers absorbiert werden. Für eine Verstimmung $\Delta\nu$ des Lasers von $+45\,\mathrm{GHz} < \Delta\nu < -135\,\mathrm{GHz}$ zur zentralen Frequenz des Übergangs ν_0, ist der Absorptionskoeffizient proportional zur Dichte multipliziert mit dem Wert eines Voigtprofils bei $\Delta\nu$ [PLL75]. Befindet man sich, wie in dieser Arbeit bei einer Verstimmung zwischen $-240\,\mathrm{GHz} < \Delta\nu < -850\,\mathrm{GHz}$, wird der Absorptionskoeffizient durch

$$\alpha = 9{,}0 \times 10^{-33} N^2 \Delta\nu^{-3/2} \tag{2.44}$$

beschrieben, wobei α in cm^{-1}, N in cm^{-3} und $\Delta\nu$ in GHz einzusetzen sind [PLL75, Kac80]. Der Absorptionskoeffizient ist hier also proportional zum Quadrat der Atomdichte.
Wie schon bei der Rechnung nach Bjorklund (Kapitel 2.2) lässt sich die Abhängigkeit von der Dichte in die Phasenanpassungsfunktion hineinziehen:

$$P_4 = \left(\frac{24\pi \times 10^7}{c}\right)^2 k_4 k_1 k_2 k_3 \left(C b_1\right)^{-2} \left|\chi_a^{(3)}\right|^2 P_1 P_2 P_3\, G^{(3)}\,, \tag{2.45}$$

$$G^{(3)} = \left(b_1 \Delta k_0\right)^2 F^{(3)}\,. \tag{2.46}$$

Hierbei wurde willkürlich der b-Parameter des ersten Strahls gewählt um $G^{(3)}$ dimensionslos zu halten.
Berechnet man $G^{(3)}$ mit dem Integralgleichungsformalismus unter den Annahmen von Bjorklund (Kapitel 2.2) und für starke Fokussierung der fundamentalen Strahlen, so erhält man die gestrichelte Kurve in Abbildung 2.3. Ein Vergleich mit der nach Bjorklund berechneten Kurve in Abbildung 2.1 b zeigt Übereinstimmung der Ergebnisse der beiden Rechenmethoden bei der Berechnung der Phasenanpassungsfunktionen[4].

[4]Hier werden repräsentativ Kurven gezeigt, die für den Grenzfall starker Fokussierung berechnet wurden. Die Ergebnisse der beiden Rechenmethoden stimmen allerdings auch außerhalb dieses Grenzfalles überein.

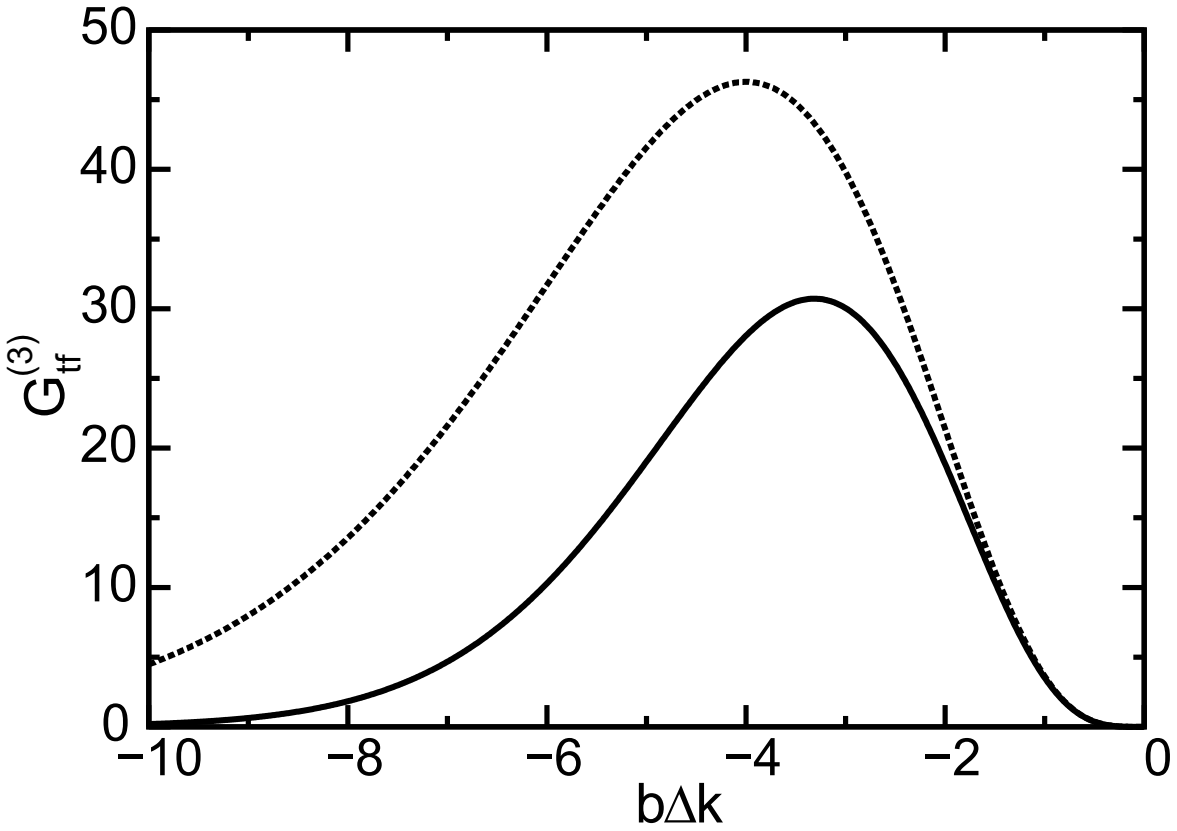

Abbildung 2.3: Die gestrichelte Kurve zeigt $G^{(3)}_{tf}$ in Abhängigkeit von $b\Delta k$ unter den Annahmen von Bjorklund aber nach dem Integralgleichungsformalismus berechnet. Das Verhältnis der Zellenlänge zum Konfokalparameter ist hier gleich $L/b = 100$. Für die durchgezogene Kurve wurde zusätzlich noch eine von $b\Delta k$ abhängige Absorption eines fundamentalen Laserstrahls angenommen. Sie wurde hier so gesetzt, dass die Leistung dieses Lasers bei einem Wert von $b\Delta k = -4$ nach der Zelle auf $1/e$ abgefallen ist.

In Gleichung 2.25 wurde bei der Darstellung der fundamentalen elektrischen Felder die Änderung der Dichte des Mediums, außer für die Phase in z-Richtung, vernachlässigt. Dies ist möglich, weil die Änderung der Absolutbeträge der k-Vektoren und der b-Parameter bei den verwendeten Laserfrequenzen und Gasdichten klein ist. Unter Berücksichtigung dieser Annahme lassen sich nun noch die beiden unterschiedlichen, nach Bjorklund und dem Integralgleichungsformalismus hergeleiteten Gleichungen zur Berechnung der konvertierten Leistungen ineinander umformen. Dies zeigt, dass die beiden Rechenmethoden im Spezialfall der Annahmen von Bjorklund äquivalent sind.
Der Integralgleichungsformalismus erlaubt es uns nun jedoch unter anderem auch die beiden für unser Experiment wichtigen Punkte der Absorption eines Laserstrahls und der variablen Dichte der Quecksilberatome mit zu berücksichtigen. Die durchgezogene Kurve in Abbildung 2.3 zeigt wieder den Spezialfall Bjorklunds bei starker Fokussierung, mit der Ausnahme, dass jetzt einer der fundamentalen Laserstrahlen Absorption erfährt. Der Absorptionskoeffizient dieses Laserstrahls wurde nach Gleichungen 2.19

und 2.44 als proportional zu $(b\Delta k)^2$ angenommen. Abbildung 2.3 veranschaulicht also, dass durch die Absorption eines fundamentalen Laserstrahls die maximal konvertierbare Leistung sinkt und das Maximum zu kleineren Werten von $b\Delta k$ und damit zu kleineren Dichten hin verschoben wird.

2.4 Die Phasenfehlanpassung Δk

Für die Berechnung der Konversionseffizienz nach dem letzten Kapitel benötigt man Kenntnis über den Wert der Phasenfehlanpassung Δk. Dieser ist abhängig von der Dichte des nichtlinearen Mediums und von seiner Resonanzstruktur und damit von den Wellenlängen der fundamentalen Laser. Nach den Gleichungen 2.12, 2.34 und 2.42 kann der Realteil von Δk geschrieben werden als

$$\Delta k = n'_4 \frac{2\pi}{\lambda_{0,4}} - \left[n'_1 \frac{2\pi}{\lambda_{0,1}} + n'_2 \frac{2\pi}{\lambda_{0,2}} + n'_3 \frac{2\pi}{\lambda_{0,3}} \right] . \tag{2.47}$$

Wegen der Energieerhaltung beim Vier-Wellen-Misch-Prozess gilt im Vakuum $\Delta k = 0$ und Gleichung 2.47 kann umgeschrieben werden als

$$\Delta k = (n'_4 - 1) \frac{2\pi}{\lambda_{0,4}} - \left[(n'_1 - 1) \frac{2\pi}{\lambda_{0,1}} + (n'_2 - 1) \frac{2\pi}{\lambda_{0,2}} + (n'_3 - 1) \frac{2\pi}{\lambda_{0,3}} \right] \tag{2.48}$$

Aus Gleichung 2.3 folgt, dass bei einem linear polarisiertem Laser der Frequenz ω

$$n'(\omega) - 1 = 2\pi \mathrm{Re}[\chi^{(1)}(\omega)] \tag{2.49}$$

ist. $\chi^{(1)}(\omega)$ kann für ein isotropes Medium in einem nicht entartetem Grundzustand g (Drehimpulsquantenzahl $J = 0$) über

$$\begin{aligned} \chi^{(1)}(\omega) &= N \frac{q_e^2}{2m_e} \sum_n \frac{f_{gn}}{\omega_{gn}} \left[\frac{1}{(\omega_{gn} - \omega) - i\gamma_{gn}} + \frac{1}{(\omega_{gn} + \omega) + i\gamma_{gn}} \right] \\ &= N \frac{q_e^2}{m_e} \sum_n \frac{f_{gn}}{\omega_{gn}^2 - (\omega - i\gamma_{gn})^2} \end{aligned} \tag{2.50}$$

berechnet werden [Boy03]. q_e ist die Elementarladung, m_e die Masse des Elektrons, n sind alle über einen Dipolübergang erreichbaren Energieniveaus, ω_{gn} ist die Frequenz des Übergangs von g nach n, γ_{gn} ist die halbe homogene Linienbreite des jeweiligen Übergangs[5] und f_{gn} seine Oszillatorstärke.

[5] Im Dichtematrixformalismus ist γ_{nm} die Dämpfungsrate der Kohärenz ρ_{nm}. γ_{nm} kann durch

$$\gamma_{nm} = \frac{1}{2}(\Gamma_n + \Gamma_m) + \gamma_{nm}^{\mathrm{col}} \tag{2.51}$$

dargestellt werden, wobei Γ_n und Γ_m die gesamten Zerfallsraten der Besetzungen aus den Niveaus n und m unter Berücksichtigung aller möglicher Zerfallskanäle sind. Die Größe $\gamma_{nm}^{\mathrm{col}}$ ist die Dipoldephasierungsrate, die durch Prozesse (wie zum Beispiel elastische Kollisionen der Atome) entsteht, die nicht mit Änderung der Populationen der Energieniveaus in Verbindung stehen [Boy03, Dem07].

Weil die Atome des Quecksilberdampfes eine von der Temperatur abhängige Geschwindigkeitsverteilung haben, gilt es, neben der homogenen Linienbreite, die Verbreiterung der Spektrallinie durch den Dopplereffekt zu berücksichtigen. Atome mit einer Geschwindigkeitskomponente v_z parallel zum Laserstrahl, absorbieren Licht mit einer Frequenz ω, die in nichtrelativistischer Näherung ($v \ll c$) über die Beziehung

$$\omega = \omega_0 \left(1 + \frac{v_z}{c}\right) \tag{2.52}$$

zur Absorptionsfrequenz eines ruhenden Atoms ω_0 verschoben ist [Dem07]. Die Dichte der Atome $N(v_z)$ in einem Geschwindigkeitsintervall $v_z + dv_z$ kann im thermischen Gleichgewicht über die eindimensionale Maxwell-Boltzmann-Verteilung berechnet werden:

$$N(v_z)dv_z = N\frac{1}{\sqrt{\pi}v_w}\, e^{-(v_z/v_w)^2} dv_z \tag{2.53}$$

und

$$v_w = 100 \times \sqrt{\frac{2k_B T}{m}}\,. \tag{2.54}$$

v_w ist die wahrscheinlichste Geschwindigkeit der Atome in $\mathrm{cm/s^{-1}}$, k_B die Boltzmann-Konstante, T die absolute Temperatur des Gases in Kelvin und m die Masse eines Atoms in Kilogramm. Bei der Berechnung von $\chi^{(1)}$ nach Gleichung 2.50 unter Berücksichtigung der Geschwindigkeitsverteilung der Atome, muss also die Laserfrequenz durch die verschobene Frequenz $\omega \to \omega\left(1 + \frac{v_z}{c}\right)$ ersetzt, die Atomdichte mit der eindimensionalen Geschwindigkeitsverteilung gewichtet und über alle Geschwindigkeiten v_z integriert werden.

$$\chi^{(1)}(\omega) = N\frac{q_e^2}{m_e}\int_{-\infty}^{\infty} \frac{1}{\sqrt{\pi}v_w}\, e^{-(v_z/v_w)^2} \sum_n \frac{f_{gn}}{\omega_{gn}^2 - \left[\omega\left(1 + \frac{v_z}{c}\right) - i\gamma_{gn}\right]^2}\, dv_z \tag{2.55}$$

Smith und Alford [SA86] bemerken, dass für die Berechnung von $\chi^{(1)}$ zusätzlich noch die Polarisierbarkeit des Kontinuums eine nicht zu vernachlässigende Rolle spielt, da auch das Kontinuum über einen Ein-Photonen-Übergang erreichbar ist[6]. Deshalb muss bei der Berechnung von $\chi^{(1)}$ noch ein weiterer Term hinzugefügt werden, der über das komplette Kontinuum integriert. In [AS87] wird gezeigt, dass der Beitrag des Kontinuums im Quecksilber durch den ersten autoionisierenden Zustand $(^2\mathrm{D}_{3/2})6\mathrm{p}'\,^1\mathrm{P}$ dominiert wird und der Beitrag durch die direkte Photoionisation aus dem Grundzustand vernachlässigt werden kann. Statt das Integral über das komplette Kontinuum zu bilden, dessen Beitrag ohnehin nicht gut bekannt ist, reicht es also aus, in der Summation in Gleichung 2.55 den Übergang in das $(^2\mathrm{D}_{3/2})6\mathrm{p}'\,^1\mathrm{P}$-Niveau zu berücksichtigen.
Für unseren Vier-Wellen-Misch-Prozess in Quecksilberdampf natürlichen Isotopengemischs müssen des Weiteren noch die Isotopieverschiebungen und bei den ungeraden Isotopen ihre jeweiligen Hyperfeinverschiebungen bei der Berechnung des Beitrages des

[6] Tatsächlich berechnen Smith und Alford hier die atomare Dipol-Polarisierbarkeit $p(\omega)$, die aber mit der Suszeptibilität erster Ordnung über $\chi^{(1)}(\omega) = Np(\omega)$ zusammen hängt.

6^1S – 6^3P-Übergangs in Gleichung 2.55 berücksichtigt werden. So liefert jedes Isotop, beziehungsweise jede Hyperfeinkomponente einen eigenen Summanden zum Gesamtbeitrag des 6^1S – 6^3P-Übergangs bei der Berechnung von Δk. Dieser muss jeweils mit der Häufigkeit H des Isotops gewichtet werden, wobei bei den Hyperfeinkomponenten zusätzlich noch die unterschiedlichen Entartungen des 6^3P Levels berücksichtigt werden müssen [Sch63]. So berechnet sich beispielsweise der Gewichtungsfaktor G des ^{201}Hg-Isotops zur $F = 1/2 \rightarrow F = 3/2$-Komponente des 6^1S – 6^3P-Übergangs dann mit den Größen aus Anhang C zu

$$G = H(^{201}\mathrm{Hg}) \times \frac{g(F = 3/2)}{g(F = 1/2) + g(F = 3/2) + g(F = 5/2)} = 0{,}13181 \times \frac{1}{3}\,, \qquad (2.56)$$

wobei F den Gesamtdrehimpuls und $g = 2F + 1$ den Entartungsfaktor eines Niveaus bezeichnet.
Damit ist es nun möglich Δk für unseren Vier-Wellen-Misch-Prozess mit den Gleichungen 2.48, 2.49, 2.55 und 2.56 zu berechnen. Die dazu benötigten Größen sind in Anhang C zusammengefasst.
Bei der Berechnung ist es zunächst wichtig, den Einfluss der homogenen Linienverbreiterung und der Dopplerverbreiterung, sowie der Aufspaltungen des 6^1S – 6^3P-Übergangs mit zu berücksichtigen. Die späteren Rechnungen werden allerdings zeigen, dass bei den Laserfrequenzen dieses Experiments, und insbesondere bei der hier gewählten Verstimmung zur 6^1S – 6^3P-Resonanz von 400 GHz zum ^{202}Hg-Isotop, die homogene Linienverbreiterung und die Dopplerverbreiterung vernachlässigt werden können (Kapitel 7.1). Je näher man jedoch an die Resonanz herankommt, desto wichtiger wird offensichtlich auch die Berücksichtigung der Linienverbreiterung.
In dieser Arbeit wird Δk vor allem über die Dichte des nichtlinearen Mediums variiert. Weil Δk nach den vier oben genannten Gleichungen proportional zu $\chi^{(1)}$ und damit auch zu N ist, bietet es sich in der Praxis an, zunächst die Phasenfehlanpassung pro Atomdichte $C = \Delta k/N$ zu berechnen, bei der Berechnung von $\chi^{(1)}$ die Dichte also einfach nicht zu berücksichtigen, und diesen festen Wert C dann erst mit der von Ort und Temperatur abhängigen Teilchendichte N zu multiplizieren.
Bei der hier beschriebenen Berechnung von Δk wurde allerdings vernachlässigt, dass sich zusätzlich zu der Atomsorte, die für Frequenzkonversion verantwortlich ist, auch noch weitere Gase in der Apparatur befinden können. In dieser Arbeit wurde zusätzlich zu dem nichtlinearen Medium ein Puffergas in die Apparatur eingefüllt, das zwar keinen Beitrag zu der Frequenzkonversion, wohl aber zu der Phasenfehlanpassung leistet (Kapitel 7.5). Weil jedes Atom einzeln zu $\chi^{(1)}$ beiträgt, kann zunächst für jede Gassorte ein unabhängiger Wert von Δk berechnet und diese beiden Werte dann zu einer gesamten Phasenfehlanpassung aufaddiert werden.

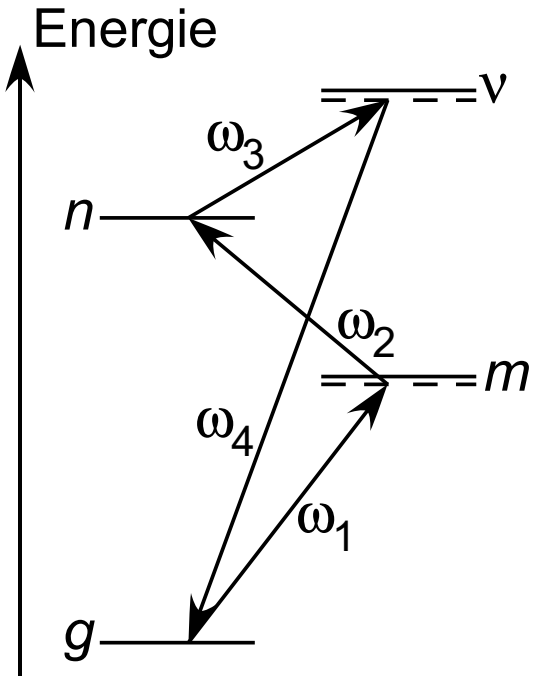

Abbildung 2.4: Energieniveauschema mit möglicher Zwei-Photonen-Resonanz. *ω_1, ω_2 und ω_3 bezeichnen die Winkelfrequenzen der fundamentalen Laser und ω_4 die des erzeugten Lichts. g ist der Grundzustand und n der Zwischenzustand, dessen Energiedifferenz zum Grundzustand genau der Photonenenergie $\hbar(\omega_1+\omega_2)$ entspricht. m und ν sind alle vom Grundzustand aus über Ein-Photonenübergänge erreichbaren Energieniveaus inklusive des Kontinuums.*

2.5 Die nichtlineare Suszeptibilität $\chi_a^{(3)}$

Für die Berechnung der im Vier-Wellen-Misch-Prozess konvertierten Leistung nach Gleichung 2.45, fehlt nun nur noch die Berechnung der nichtlinearen Suszeptibilität dritter Ordnung pro Atomdichte $\chi_a^{(3)}$, die in diesem Kapitel behandelt werden soll.
Ein allgemeiner Ausdruck für den 81-komponentigen Tensor $\boldsymbol{\chi}^{(3)}$ findet sich in [Boy03]. Hier wird sich auf eine Behandlung von $\chi^{(3)}$ als Skalar beschränkt (siehe Kapitel 2.1). Für eine allgemeine Behandlung von $\boldsymbol{\chi}^{(3)}$ mit unterschiedlich polarisierten fundamentalen Lasern sei auf die Arbeiten von Hilber [Hil86] und Yuratich und Hanna [YH76] verwiesen.
In einer allgemeinen Darstellung setzt sich $\chi^{(3)}$ aus 48 verschiedenen Termen zusammen, die alle Möglichkeiten des Vier-Wellen-Mischens beschreiben. Interessant für diese Arbeit sind aber nur Terme in $\chi^{(3)}$, die die Summenfrequenzmischung betreffen. Diese gilt es zu maximieren, um eine möglichst effiziente Frequenzkonversion ins VUV zu erhalten. Alle anderen Terme werden im Folgenden vernachlässigt.
$\chi^{(3)}$ und damit die Effizienz der Summenfrequenzmischung kann durch das Ausnutzen einer Zwei-Photonen-Resonanz im nichtlinearen Medium stark erhöht werden [BC90, SAH88]. Dabei werden zwei der fundamentalen Lichtfelder so gewählt, dass die Sum-

me ihrer Frequenzen gerade die Energielücke $\Delta E_{2\gamma}$ vom Grundzustand zu einem über einen Zwei-Photonen-Übergang erreichbaren Zustand schließt (Abbildung 2.4).

$$\hbar\left(\omega_1+\omega_2\right)=\Delta E_{2\gamma} \tag{2.57}$$

Hierbei ist $\hbar$ die Planck-Konstante dividiert durch 2π. Bei der Erzeugung von Strahlung bei 121,56 nm in Quecksilberdampf kann so die Konversionseffizienz durch das Ausnutzen des $6^1\mathrm{S}$ – $7^1\mathrm{S}$-Übergangs erhöht werden [SA87]. Über die Energie $\Delta E_{2\gamma}$ und die feste Frequenz der zu erzeugenden Strahlung ist dann auch die Frequenz des dritten fundamentalen Lasers festgelegt.

$$\hbar\omega_3=\hbar\omega_4-\Delta E_{2\gamma} \tag{2.58}$$

Durch die Nutzung der $6^1\mathrm{S}$ – $7^1\mathrm{S}$-Zwei-Photonen-Resonanz kommt es neben der Erhöhung von $\chi^{(3)}(\omega_1+\omega_2+\omega_3)$ aber auch zu einem Pumpen der Atome des Mediums in das $7^1\mathrm{S}$-Niveau, jedoch bei unseren Laserintensitäten, die im Fokus unter $10^6\,\mathrm{W/cm^2}$ bleiben, mit so einer geringen Effizienz, dass dies keinen Einfluss auf $\chi^{(3)}(\omega_1+\omega_2+\omega_3)$ hat. Die Fluoreszenz der angeregten Atome kann jedoch zur Optimierung der Überlagerung der beiden fundamentalen Strahlen genutzt werden (Kapitel 5.4).
Auch weitere nichtlineare Effekte, die durch das Ausnutzen der Zwei-Photonen-Resonanz die Konversionseffizienz limitieren könnten, haben bei unseren Lichtintensitäten noch keinen messbaren Einfluss auf die erzeugte Leistung [SAH88].
Im thermischen Gleichgewicht lässt sich das Verhältnis der Besetzungswahrscheinlichkeiten zweier atomarer Niveaus mit der Boltzmann-Verteilung berechnen [Dem00]. Für den ersten angeregten Zustand $6^3\mathrm{P}$ und den Grundzustand $6^1\mathrm{P}$ in Quecksilber ist dieses Verhältnis bei 200 °C gleich $2{,}7\times10^{-52}$, es befinden sich also alle Atome im Grundzustand.
Unter den in diesem Kapitel besprochenen Voraussetzungen, lineare Polarisation der Laserfelder in x-Richtung, Ausnutzung der 6S – 7S-Zwei-Photonen-Resonanz und alle Quecksilberatome thermisch im Grundzustand, lässt sich $\chi_a^{(3)}$ zu

$$\begin{aligned}\chi_a^{(3)}&=\frac{\left(q_e a_0\right)^4}{6(hc)^3}S\left(\omega_1+\omega_2\right)\chi_{12}\chi_{34}\\&=8{,}87\times10^{-25}S\left(\omega_1+\omega_2\right)\chi_{12}\chi_{34}\end{aligned} \tag{2.59}$$

berechnen [SA87]. Hierbei sind q_e die Elementarladung und a_0 der Bohrsche Radius. $\chi_a^{(3)}$ wird in dieser Gleichung in cgs-Einheiten berechnet, $[\chi_a^{(3)}]=\mathrm{cm^6/erg}$, und kann so direkt in die Beziehungen aus Kapitel 2.3 eingesetzt werden. Die Berechnung und Interpretation der partiellen Suszeptibilitäten χ_{12} und χ_{34} und der Funktion $S(\omega_1+\omega_2)$ sollen im Folgenden getrennt voneinander betrachtet werden.

2.5.1 Die partiellen Suszeptibilitäten χ_{12} und χ_{34}

Die partiellen Suszeptibilitäten können in der Notation von Abbildung 2.4 zu

$$\chi_{12} = \frac{1}{2\pi c} \sum_m \left(\frac{\langle n | \mathbf{d} \cdot \hat{\boldsymbol{\epsilon}}_2 | m \rangle \langle m | \mathbf{d} \cdot \hat{\boldsymbol{\epsilon}}_1 | g \rangle}{\omega_{gm} - \omega_1} + \frac{\langle n | \mathbf{d} \cdot \hat{\boldsymbol{\epsilon}}_1 | m \rangle \langle m | \mathbf{d} \cdot \hat{\boldsymbol{\epsilon}}_2 | g \rangle}{\omega_{gm} - \omega_2} \right) \tag{2.60}$$

und

$$\chi_{34} = \frac{1}{2\pi c} \sum_\nu \left(\frac{\langle n | \mathbf{d} \cdot \hat{\boldsymbol{\epsilon}}_3 | \nu \rangle \langle \nu | \mathbf{d} \cdot \hat{\boldsymbol{\epsilon}}_4 | g \rangle}{\omega_{g\nu} - \omega_4} + \frac{\langle n | \mathbf{d} \cdot \hat{\boldsymbol{\epsilon}}_4 | \nu \rangle \langle \nu | \mathbf{d} \cdot \hat{\boldsymbol{\epsilon}}_3 | g \rangle}{\omega_{g\nu} + \omega_3} \right) \tag{2.61}$$

berechnet werden [SA87]. $\mathbf{d}$ bezeichnet dabei den Dipoloperator und $\hat{\boldsymbol{\epsilon}}$ die Polarisationsrichtung der jeweiligen Lichtwelle. Die Summen über m und ν gehen jeweils über alle, vom Grundzustand aus über Ein-Photonenübergänge erreichbaren, Zustände inklusive des Kontinuums [AS87].

Grundsätzlich müssen, wie schon bei der Berechnung von $\chi^{(1)}$, auch die homogenen und inhomogenen Linienverbreiterungen und die Isotopieverschiebungen berücksichtigt werden. Die Linienverbreiterungen haben hier jedoch, wie auch auf die Berechnung von $\chi^{(1)}$ keinen Einfluss und können deshalb vernachlässigt werden (vergleiche Kapitel 7.1). Gleichungen 2.60 und 2.61 zeigen, dass sich χ_{12} und χ_{34} und damit auch $\chi_a^{(3)}$ prinzipiell erhöhen lassen, wenn man sich mit ω_1 oder mit ω_4 in der Nähe einer der Ein-Photonen-Resonanzen befindet[7] (Abbildung 2.5). Da wir in unserem Experiment auf eine bestimmte Frequenz ω_4 festgelegt sind, ist mit dieser kein Einfluss zu nehmen. Stattdessen wird die Wellenlänge des ersten fundamentalen Lasers in die Nähe der ersten Ein-Photonen-Resonanz, der $6^1\mathrm{S}$ – $6^3\mathrm{P}$-Resonanz bei 253,7 nm, gelegt. Kommt man jedoch zu nah an diese Ein-Photonen-Resonanz heran, überwiegt in Gleichung 2.39 irgendwann die Absorption durch diesen dipolerlaubten Übergang und damit die Verringerung der Leistung bei 253,7 nm, gegenüber der Erhöhung von $\chi_a^{(3)}$ und die erzeugte Leistung sinkt wieder.

Um herauszufinden, welche Niveaus des Quecksilbers bei den Summationen in den Gleichungen 2.60 und 2.61 berücksichtigt werden müssen und für die Berechnung der zugehörigen Dipolmatrixelemente, ist es sinnvoll ein paar Vorüberlegungen anzustellen. Der Grundzustand $6^1\mathrm{S}$ hat den Gesamtdrehimpuls $J = 0$, da $L = 0$ und $S = 0$ sind. Auch der $7^1\mathrm{S}$-Zustand, der für die Zwei-Photonen-Resonanz gewählt wurde, hat den Gesamtdrehimpuls $J = 0$. In allen Dipolmatrixelementen bei der Berechnung von χ_{12} und χ_{34} ist einer dieser beiden Zustände enthalten. Aufgrund der Auswahlregeln für elektrische Dipolübergänge sind Gesamtdrehimpulsänderungen von $\Delta J = 0, \pm 1$ erlaubt, Übergänge von $J = 0 \rightarrow J = 0$ aber verboten [Dem00]. Es müssen also nur Zustände m und ν mit $J = 1$ berücksichtigt werden.

[7] ω_1 ist dabei äquivalent zu ω_2, weil sie in diesem Summenfrequenz-Misch-Prozess nicht unterscheidbar sind: $\Delta E_{2\gamma} = \hbar(\omega_1 + \omega_2)$. ω_3 und ω_4 hingegen sind voneinander unterscheidbar: $\Delta E_{2\gamma} = \hbar(\omega_4 - \omega_3)$. Diese Tatsache spiegelt sich auch in den Gleichungen 2.60 und 2.61 zur Berechnung von χ_{12} und χ_{34} wieder.

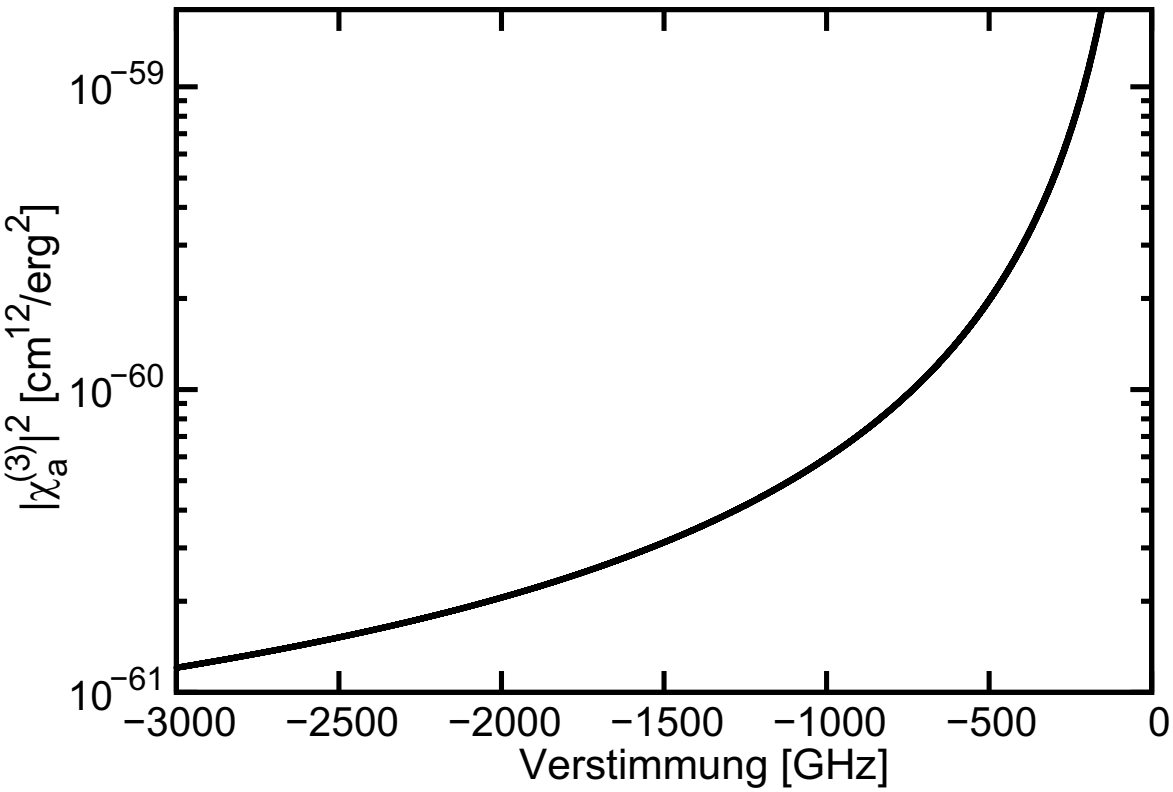

Abbildung 2.5: $\left|\chi_a^{(3)}\right|^2$ als Funktion der Verstimmung des ersten fundamentalen Lasers vom 6^3P-Niveau. *Berechnung wie in Kapitel 7.2; Die Temperatur des Quecksilberdampfes beträgt $T = 160\,°C$ und ω_2 ist so gewählt, dass $|S(\omega_1 + \omega_2)|^2$ maximal ist.*

Bei linear in x-Richtung polarisiertem, in z-Richtung propagierendem Licht, reicht es aus nur die x-Komponente des Dipolmatrixelements zu betrachten [Rei84]. Zudem gilt bei linear polarisiertem Licht, dass sich die x-Komponente des Gesamtdrehimpulses des Atoms bei einem Dipolübergang nicht ändert ($\Delta M_J = 0$).
Unter diesen Vorraussetzungen lassen sich die Dipolmatrixelemente aus den Oszillatorstärken f_{ab} der Übergänge und den Energieabständen ΔE_{ab} der Niveaus in Rydberg zu

$$|\langle b, J+1, M_J\,|x|\,a, J, M_J\rangle| = \left\{\frac{3\left[(J+1)^2 - M_J^2\right] g_u f_{ab}}{(J+1)(2J+1)(2J+3)\Delta E_{ab}}\right\}^{1/2} \tag{2.62}$$

berechnen [Rei84][8]. g_u ist der Entartungsfaktor des unteren Niveaus, kann also je nach Fall sowohl g_a, als auch g_b sein. Weil der Dipoloperator ein hermitescher Operator ist, gilt [CTDL99]

$$|\langle b, J+1, M_J\,|x|\,a, J, M_J\rangle| = |\langle a, J, M_J\,|x|\,b, J+1, M_J\rangle| \ , \tag{2.63}$$

[8]Da es sich in Gleichung 2.62 um die Berechnung eines Betrages handelt, muss der Wert unter der Wurzel positiv sein. Dies ist gewährleistet, da ganz allgemein Energieabstände von einem unteren (oberen) zu einem oberen (unteren) Niveau immer positiv (negativ) sind und auch die Absorptions- (Emissions-) Oszillatorstärken bei einem Übergang von einem unterem (oberen) zu einem oberen (unteren) Niveau immer positiv (negativ) sind [Hil82, Hil83].

weshalb Gleichung 2.62 zur Berechnung aller Dipolmatrixelemente der Gleichungen 2.60 und 2.61 verwendet werden kann. Die dazu benötigten Energieabstände, die zugehörigen Oszillatorstärken und die relativen Vorzeichen der Produkte der Dipolmatrixelemente sind in Anhang C zu finden.
Wie bei der Berechnung von $\chi^{(1)}$ in Kapitel 2.4 muss auch hier wieder bei den Summationen das Kontinuum berücksichtigt werden. Sowohl bei der Berechnung von χ_{12} als auch bei der Berechnung von χ_{34} wird dieser Beitrag wieder vom ersten autoionisierenden Niveau dominiert und die Beiträge direkter Photoionisation vom 6^1S-, beziehungsweise vom 7^1S-Niveau, können vernachlässigt werden [AS87].
Mit dem hier vorgestellten Formalismus lässt sich $\chi_a^{(3)}$ mit einer wellenlängenabhängigen Genauigkeit von etwa 20 % – 30 % berechnen. Diese Genauigkeit ist durch die Oszillatorstärken aus [AS87] limitiert.

2.5.2 Die Abhängigkeit der konvertierten Leistung von der Verstimmung zur Zwei-Photonen-Resonanz

Als letzter Term zur Berechnung der nichtlinearen Suszeptibilität $\chi_a^{(3)}$ aus Gleichung 2.59 fehlt nun noch die Funktion $|S(\omega_1+\omega_2)|^2$. In ihr steckt die Abhängigkeit der konvertierten Leistung von der Zwei-Photonen-Resonanz. Berechnet man diese Funktion für ein einzelnes Isotop, so hat sie die Form einer mit einem Gaußprofil gefalteten Lorentzkurve, was als Voigtprofil bezeichnet wird [Dem07]. $S(\omega_1+\omega_2)$ lässt sich zu

$$S(\omega_1+\omega_2) = \frac{1}{\sqrt{\pi}w}\int_{-\infty}^{\infty}\frac{\exp(-u^2)}{u-\zeta}du = Z(\zeta)/w \tag{2.64}$$

mit

$$\zeta = \left(\omega_1+\omega_2-\frac{\Delta E_{2\gamma}}{\hbar}+i\gamma\right)/w \tag{2.65}$$

und

$$w = \frac{\Delta E_{2\gamma}}{\hbar}\times\frac{v_w}{c} = \frac{\Delta\omega_D}{2\sqrt{\ln 2}} \tag{2.66}$$

berechnen [SA87]. Dabei ist γ die halbe Breite der Lorentzkurve und $\Delta\omega_D$ die Dopplerbreite der Gaußkurve. Die sogenannte Plasmadispersionsfunktion $Z(\zeta)$ hängt über

$$Z(\zeta) = i\sqrt{\pi}\exp(-\zeta^2)\left[1+\mathrm{erf}(i\zeta)\right] \tag{2.67}$$

mit der Fehlerfunktion erf zusammen [FC61], die zum Beispiel im Rechenprogramm Mathematica schon impliziert ist.
Bei der Berechnung von $S(\omega_1+\omega_2)$ ist für Quecksilberdampf natürlichen Isotopengemischs die relative Häufigkeit der einzelnen Quecksilberisotope und deren Isotopieverschiebung der Übergansfrequenz $\Delta E_{2\gamma}/\hbar$ zu berücksichtigen. Das bedeutet, es wird eine Funktion $S(\omega_1+\omega_2)_{Iso}$ für jedes einzelne Isotop berechnet, diese jeweils mit der Häufigkeit des Isotops gewichtet und dann alle gewichteten Funktionen zu einer resultierenden Funktion $S(\omega_1+\omega_2)$ aufaddiert.

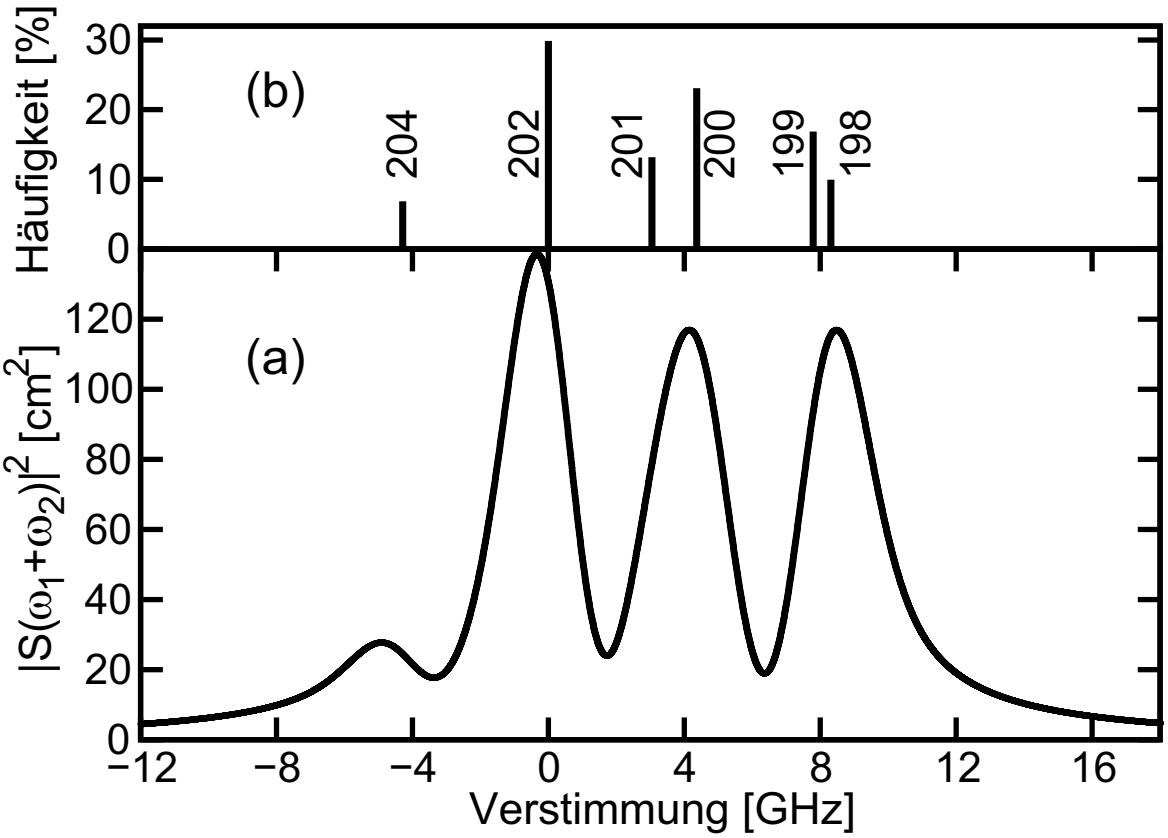

Abbildung 2.6: $|S(\omega_1+\omega_2)|^2$ **in Abhängigkeit von der Verstimmung der ersten beiden Laser von der Zwei-Photonen-Resonanz** $6^1\mathrm{S} \rightarrow 7^1\mathrm{S}$ **des** ^{202}**Hg-Isotops:** $(\omega_1+\omega_2)/2\pi - \Delta E_{2\gamma}/h$**.** *Berechnung wie in Kapitel 7.2; Temperatur des Quecksilberdampfes* $T = 160\,°C$*.*

Stimmt man die Frequenz des ersten oder des zweiten fundamentalen Lasers durch, so dass man mit der Summe der Energien der ersten beiden Laser über die Zwei-Photonen-Resonanz scannt, so ist die erzeugte Leistung bei Lyman-α proportional zu $|S(\omega_1+\omega_2)|^2$ (siehe Abbildung 2.6). Dieser Zusammenhang gilt allerdings nur, wenn man sich mit der Frequenz des scannenden Lasers weit genug von allen Ein-Photonen-Resonanzen entfernt befindet, so dass χ_{12} als konstant angenommen werden kann und auch Absorption keine Rolle spielt.

Kapitel 3

Die Detektion einzelner Photonen

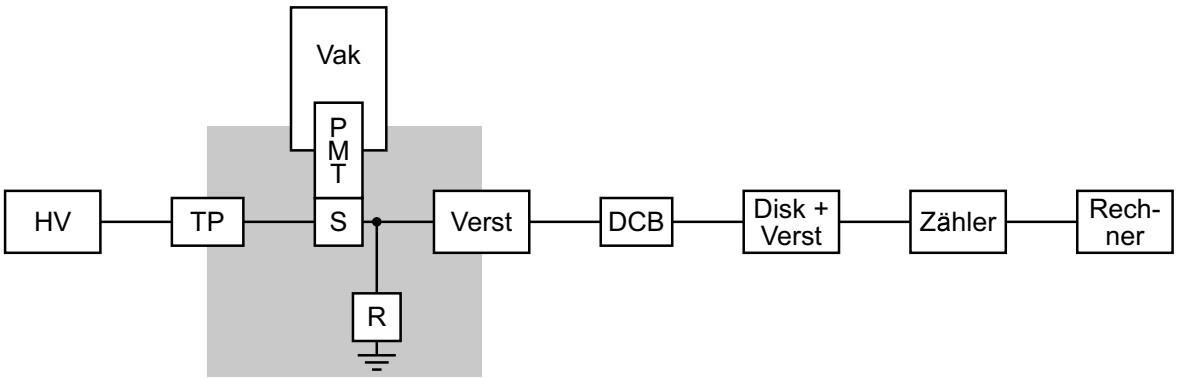

Abbildung 3.1: Skizze des kompletten Aufbaus zur Detektion von einzelnen Photonen. *HV: Hochspannungsquelle; TP: Tiefpass; S: Schaltung zur Ansteuerung des Photomultipliers; PMT: Photomultiplier; Vak: Vakuumsystem; R: Widerstand des Snubbers; Verst: Verstärker; DCB: DC-Block zur Unterdrückung des Gleichspannungs-Offsets des Verstärkers; Disk: Diskriminator. Der grau unterlegte Bereich benötigt besondere Abschirmung gegen elektromagnetische Störfelder.*

Eine möglichst effiziente Detektion von einzelnen Lyman-α-Photonen erfordert einen empfindlichen und dabei rauscharmen Einzelphotonen-Detektionsapparat. In den folgenden Kapiteln soll näher darauf eingegangen werden, worauf bei der Verwendung eines Photomultipliers im Einzelphotonenbetrieb, bei der Verstärkung des Signals und beim Setzen einer geeigneten Detektionsschwelle geachtet werden muss. Um dabei einen besseren Überblick zu behalten und die einzelnen Komponenten richtig in den Gesamtaufbau einordnen zu können, soll dieser hier schon kurz umrissen werden. Abbildung 3.1 zeigt den auf positiver Hochspannung betriebenen Photomultiplier, der sein, mit einem Snubber geformtes Signal, an einen dreistufigen Verstärker (Stanford Research Systems SR440) weitergibt. Das verstärkte Signal, dessen Amplitude eine bestimmte, an einem Multi-Channel Scaler (Stanford Research Systems SR430) eingestellte, Schwelle überschreitet, wird dann von diesem nachverstärkt und von dem nachfolgenden Zähler (Agilent 53132A 225 MHz Universal Counter) gezählt. Der Zähler wird dann noch über einen Computer ausgelesen und die gemessene Zählrate dort abgespeichert.

3.1 Der Photomultiplier

Der in dieser Arbeit verwendete Photomultiplier (Hamamatsu R6835) besitzt eine Cs-I-Photokathode. Diese ist speziell zur Detektion von vakuumultravioletter (VUV) Strahlung geeignet und ihre Detektionseffizienz nimmt zu Wellenlängen oberhalb von 200 nm stark ab, was in der Literatur als solar blind bezeichnet wird. Diese Unempfindlichkeit bei höheren Wellenlängen hilft bei der Messung der erzeugten Lyman-α-Strahlung, Untergrund durch die fundamentalen Laser zu vermeiden. Für Messungen im VUV muss sich das Eintrittsfenster des Photomultipliers im Vakuum befinden, da dieser Spektralbereich, wie der Name schon sagt, von Luft absorbiert wird. Der Photomultiplier ist ein sogenannter Head-on-Typ und befindet sich in einer Zylindrischen Glasröhre, die mittels einer Gummi-O-Ring Dichtung an einen CF-Flansch gedichtet ist. So kann das frontseitige MgF_2-Fenster des Photomultipliers ins Vakuum eingebaut werden und es lässt sich Strahlung bis zu etwa 115 nm, der Transmissionsgrenze von MgF_2, detektieren [HM69].
Die Elektronen, die von der VUV-Strahlung aus der Photokathode des Photomultipliers herausgelöst werden, sollen durch den Photomultiplier auf eine Anzahl vervielfältigt werden, die von elektronischen Bauteilen weiterverarbeitet werden kann. Dazu werden eine Reihe von elf auf die Kathode folgende Elektroden, sogenannte Dynoden, sukzessiv auf höhere Potentiale gelegt. Dies bewirkt, dass das Elektron von der Kathode auf die erste Dynode beschleunigt wird, dort mehrere Elektronen herausschlägt, die dann ihrerseits wieder an der nächsten Dynode vervielfältigt werden. Die hierfür benötigten unterschiedlichen Potentiale werden realisiert, indem die Kathode, die aufeinander folgenden Dynoden und die Anode durch eine Widerstandskette miteinander verbunden werden und eine Hochspannung zwischen Kathode und Anode angelegt wird. Nun gibt es verschiedene Möglichkeiten diese Hochspannung zwischen Kathode und Anode anzulegen. Legt man an die Kathode das Potential der Erde und die Anode auf eine positive Hochspannung, so können Elektronen vervielfältigt und somit einzelne Photonen nachgewiesen werden (Abbildung 3.2 a).
Legt man stattdessen die Kathode auf eine negative Hochspannung und die Anode auf das Potential der Erde, so können ebenfalls Photonen nachgewiesen werden. Befindet sich dabei allerdings die negativ geladene Kathode in der Nähe einer geerdeten Metallfläche, wie es durch den Einbau des Photomultipliers ins Vakuum der Fall ist, so kommt es zu einem Potentialgefälle zwischen Kathode und Metall. Durch dieses Potentialgefälle werden Elektronen aus der Kathode herausgelöst und auf die Glashülle des Photomultipliers beschleunigt, was Störungen verursacht [Ham06]. Die Amplitude dieser Störungen, ein Beispiel ist in Abbildung 3.3 gezeigt, ist wesentlich größer, als die Amplitude eines durch ein Photon ausgelösten Signals. Deshalb verursachen die vielen Schwingungen der Störungen eine hohe Anzahl an Counts.
Aus diesem Grund verwenden wir die Konfiguration mit geerdeter Kathode zum Einzelphotonennachweis. Um die nachfolgenden Geräte jedoch nicht durch die positive

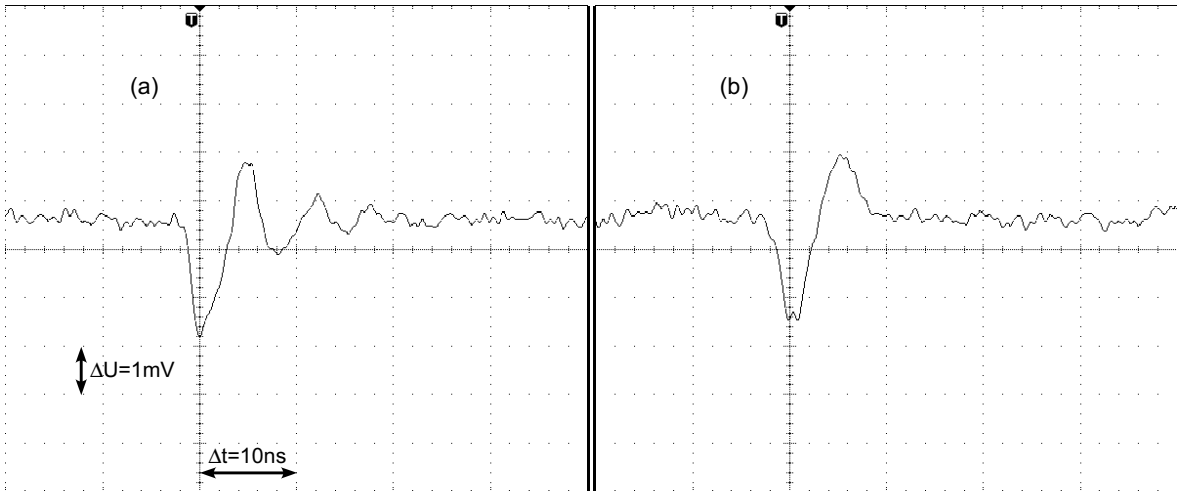

Abbildung 3.2: (a) Einzelnes, durch den Photomultiplier verstärktes Photon mit Nachschwingen des Schaltkreises, sogenanntem Ringing (gemessen mit einem 350 MHz-Oszilloskop an seinem 50 Ω-Eingang); (b) Durch den Photomultiplier verstärktes Photon, dessen Ringing durch Anfügen eines Snubbers an den Schaltkreis bereinigt wurde.

Hochspannung an der Anode zu beschädigen, wird das Signal dabei kapazitiv an der Anode abgegriffen.
Ein Schaltplan, der diese Ansteuerung des Photomultipliers realisiert, ist in Abbildung 3.4 dargestellt. Diese Schaltung wurde auf einem entsprechenden Photomultiplier-Sockel von Hamamatsu aufgelötet und kann so an dem Photomultiplier angebracht werden.
Bei nominell maximaler Verstärkung durch den Photomultiplier, was einer Spannung zwischen Photokathode und Anode von 2,5 kV entspricht, werden typischerweise $6{,}3 \times 10^5$ Elektronen pro detektiertem Photon in einem Signal-Puls von ca. 4 ns Breite realisiert. Dies ist gleichbedeutend mit einem durchschnittlichen Strom von etwa 25 μA oder, an einem 50 Ω-Widerstand gemessen, einer Signalhöhe von 1,3 mV[1]. Aufgrund der Poissonverteilung der Verstärkung der einzelnen Dynoden, variiert die Pulshöhe jedoch stark (Kapitel 3.4).

[1]Bei einem höheren Messwiderstand, von zum Beispiel 1 MΩ, erhält man zwar ein höheres, aber auch zeitlich verbreitertes Signal, wodurch die maximale Rate, mit der einkommende Photonen detektiert werden können, verringert wird. Zudem haben die Koaxialkabel, die zur Signalleitung verwendet werden können, eine Impedanz von 50 Ω, wodurch bei Verwendung eines anderen Messwiderstands im Hochfrequenzbereich Reflexionsverluste auftreten.

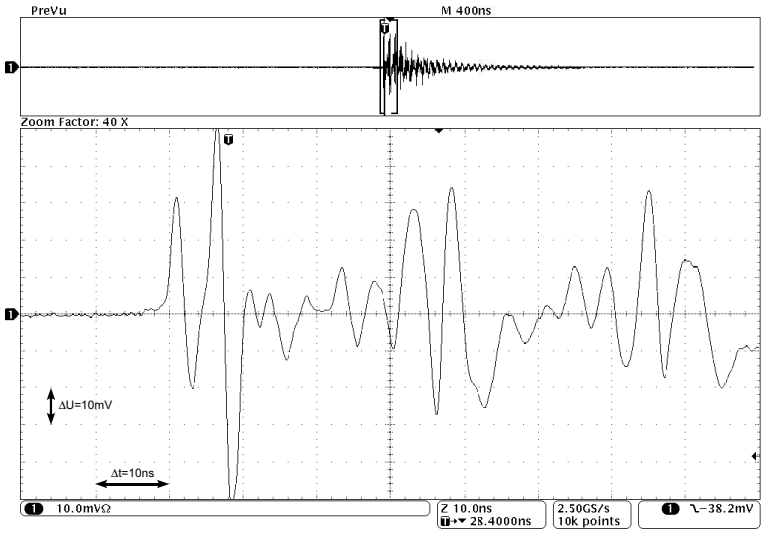

Abbildung 3.3: Typische Störung verursacht durch eine auf negativer Hochspannung liegenden Kathode im Vakuumaufbau (gemessen mit einem 350 MHz-Oszilloskop an seinem $50\,\Omega$-Eingang). *Auffällig ist, dass diese Störungen immer mit einem Anstieg der Spannung ins Positive beginnen, wohingegen durch Photonen hervorgerufene Signale immer mit einem Spannungsabfall ins Negative beginnen.*

3.2 Die Unterdrückung von Nachschwingungen des Signalpulses

Das Signal eines einzelnen Photons wurde in Abbildung 3.2 a gezeigt. Die Schwingungen, die sich an den negativen Spannungspuls anschließen, sind ein wohlbekanntes Phänomen beim Einzelphotonennachweis und werden in der Literatur als Ringing bezeichnet [DAB07], welches auch ganz allgemein in der Elektronik bei schnellen Ein- und Ausschaltvorgängen vorkommt. Setzt man die Schwelle zur Detektion eines Photons niedrig, so dass auch schwach verstärkte Signale detektiert werden können, erzeugt das Ringing der höheren Pulse zusätzliche unechte Counts. Um das Ringing zu unterdrücken wird ein sogenannter Snubber benutzt [DAB07]. Ein Snubber kann, wie in diesem Fall, einfach ein Koaxialkabel der Impedanz $R_0 = 50\,\Omega$ mit einer bestimmten Länge l sein, das nach dem Photomultiplier mit einem T-Stück an das Signalkabel ($R_0 = 50\,\Omega$) angefügt und über ein Potentiometer abgeschlossen wird. Die Hälfte des Signalpulses geht so nicht in das Signal-, sondern in das Snubberkabel. An dem am Potentiometer eingestellten Widerstand R_P wird dann ein Teil dieses Pulses nach der Beziehung

$$r_{hf} = \frac{R_P - R_0}{R_P + R_0} \tag{3.1}$$

reflektiert, wobei r_{hf} der Reflexionskoeffizient im hochfrequenten Bereich ist [Sta07]. Für $R_P < R_0$ ist das reflektierte Signal invertiert und seine Amplitude, verglichen mit dem eingehenden Puls, kann zwischen 0 % für $R_P = R_0 = 50\,\Omega$ und 100 % für $R_P = 0\,\Omega$ frei eingestellt werden. Mit der richtigen Länge des Snubberkabels, welche

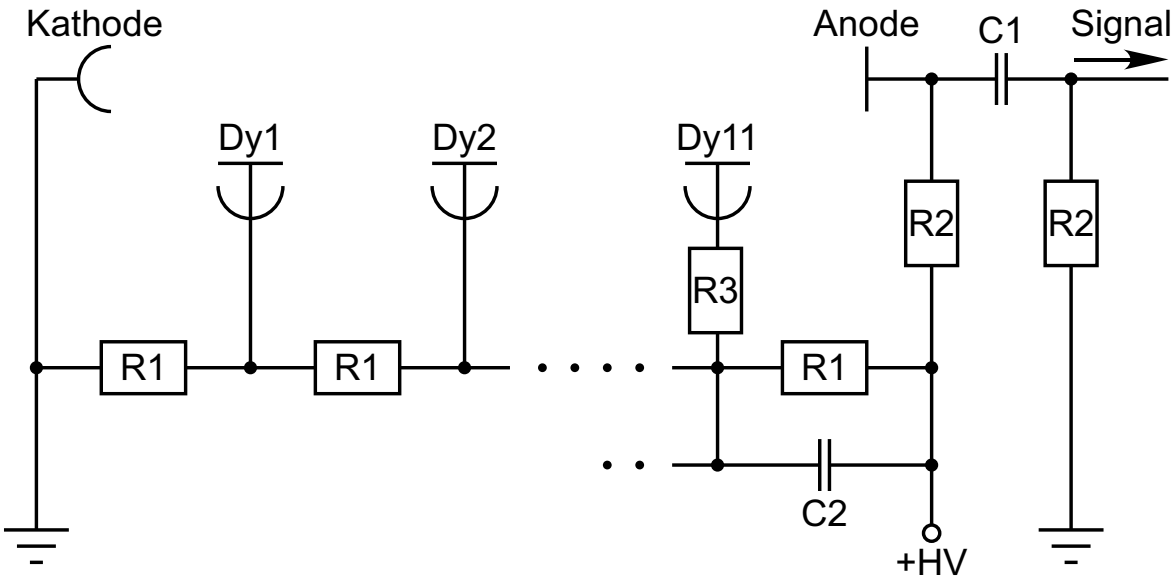

Abbildung 3.4: Beschaltung des Photomultiplier. *$Dy1-11$ sind die 11 Dynoden; $R1 = 2 \times 240\,\mathrm{k\Omega} = 480\,\mathrm{k\Omega}$; $R2 = 1\,\mathrm{M\Omega}$; $R3 = 51\,\Omega$; $C1 = 4{,}7\,nF$; $C2 = 1\,nF$. Parallel zu den letzten drei Widerständen der Widerstandskette sind jeweils Kondensatoren $C2$ geschaltet. Dadurch wird die Linearität des Photomultipliers im Einzelphotonenbetrieb verbessert. Bei kurz aufeinander folgenden Photonen kann die Hochspannungsquelle über die Widerstandskette nicht schnell genug ausreichend Ladungen für die Elektronenvervielfältigung nachliefern, die dann stattdessen über die Kondensatoren bereitgestellt werden [Ham06]. Die Widerstände $R3$, die in Serie zu den letzten drei Dynoden geschaltet sind und nahezu keine Induktivität besitzen, dienen zur Abschwächung von Ringing.*

die Zeitverzögerung des invertierten Pulses gegenüber dem Signalpuls bestimmt, und richtig gewähltem Widerstand R_P, wird der reflektierte Puls dann zeitverzögert so auf das Ringing des Signals gelegt, dass beide destruktiv miteinander interferieren.
Ein Beispiel für ein so bereinigtes Signal ist in Abbildung 3.2 b zu sehen.

3.3 Unterdrückung von weiteren Rauschquellen

Weil die vom Photomultiplier erzeugten Strompulse sehr klein sind muss viel Wert auf gute Rauschunterdrückung gelegt werden, um auch schwach verstärkte Signale nachweisen zu können. Um jedoch von vorne herein ein stärkeres Signal des Photomultipliers zu erhalten, kann auch eine höhere als die nominelle Maximalspannung an den Photomultiplier angelegt werden. Es muss dabei nur beachtet werden, dass der maximal zulässige durchschnittliche Anodenstrom nicht überstiegen wird, was zu einer Beschädigung der Anode führen würde [Klo08]. Dies kann jedoch bei unseren Zählraten ausgeschlossen werden. So kann durch eine höhere Verstärkung des Photomultipliers das Signal-zu-Rausch-Verhältnis verbessert werden. Der Sockel des Photomultipliers wurde hierfür speziell für Hochspannungen von bis zu 3,5 kV ausgelegt. Insbesondere wurden die Widerstände für die Widerstandskette $R1$ aus jeweils zwei Widerständen von $240\,\mathrm{k\Omega}$ in

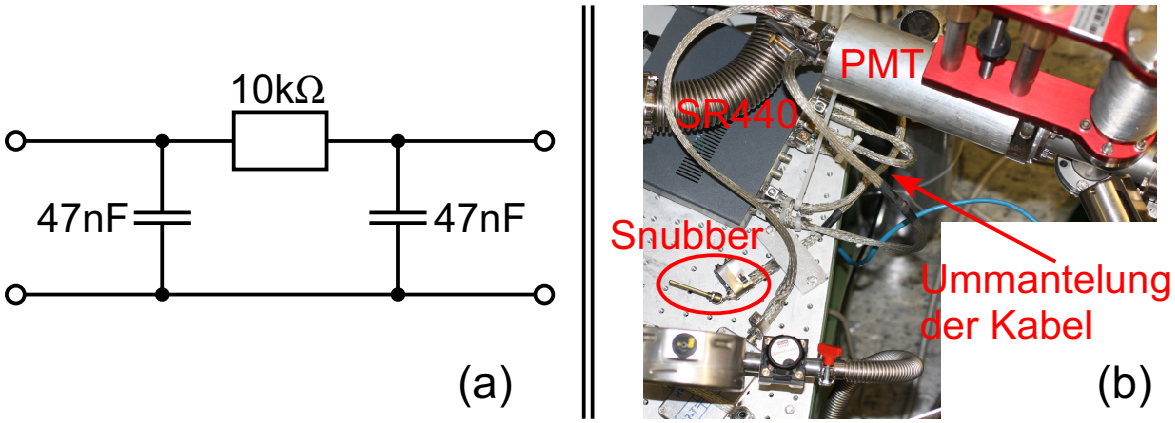

Abbildung 3.5: (a) Tiefpass zur Unterdrückung des Rauschens des Hochspannungsschaltnetzteils; (b) Abschirmung des Photomultipliers und der Signalkabel gegen elektromagnetische Störfelder.

Serie gelötet, um den maximalen Spannungsabfall von 200 V pro Widerstand nicht zu überschreiten.
Dennoch ist diese Maßnahme nur eine Hilfe bei der Verbesserung des Signal-zu-Rausch-Verhältnisses und es müssen alle weiteren Rauschquellen so gut wie möglich unterdrückt werden. Die verschiedenen Rauschquellen und deren Unterdrückung sollen nun im Folgenden einzeln besprochen werden.
Die erste Rauschquelle wurde bereits in Kapitel 3.1 besprochen und kann durch eine auf negative Hochspannung gelegte Kathode entstehen, die aber hier durch eine positive Anodenkonfiguration umgangen wird.
Eine weitere Rauschquelle ist das verwendete Hochspannungsschaltnetzteil (Fug HCN 14-3500) welches die benötigte Hochspannung für den Photomultiplier erzeugt. Durch das Schalten der Spannung erzeugt es periodisches Rauschen in einem weiten Frequenzband, das sich durch die Schaltung des Photomultiplier (Abbildung 3.4) auf die Signalleitung überträgt. Dieses Rauschen wird unterdrückt, indem der passive Tiefpass aus Abbildung 3.5 a zwischen das Netzteil und die Photomultiplier geschaltet wird.
Elektromagnetische Störfelder stellen eine weitere signifikante Rauschquelle dar. Sie induzieren Spannungen, die dann ebenfalls vom Verstärker verstärkt und als Counts nachgewiesen werden. Um dieses Rauschen zu unterdrücken, ist es wichtig den gesamten in Abbildung 3.1 eingezeichneten Bereich gut abzuschirmen. Der Photomultiplier und der Schaltungsaufbau aus Abbildung 3.4 werden hierzu in einen Zylinder aus Aluminium eingebracht, der an der Vakuumapparatur befestigt wird (Abbildung 3.5 b). Die Koaxialkabel werden mit einer zusätzlichen engmaschigen Abschirmung umgeben, die mit Schlauchklemmen an den BNC-Steckern befestigt und gut am optischen Tisch geerdet wird.
Zuletzt ist es noch wichtig das Signal zu verstärken, ohne dabei zusätzliches Rauschen zu produzieren. Hierzu werden die Strompulse in einem rauscharmen Verstärker (Stanford Research SR440) an einem 50 Ω-Widerstand in Spannungspulse umgewandelt und

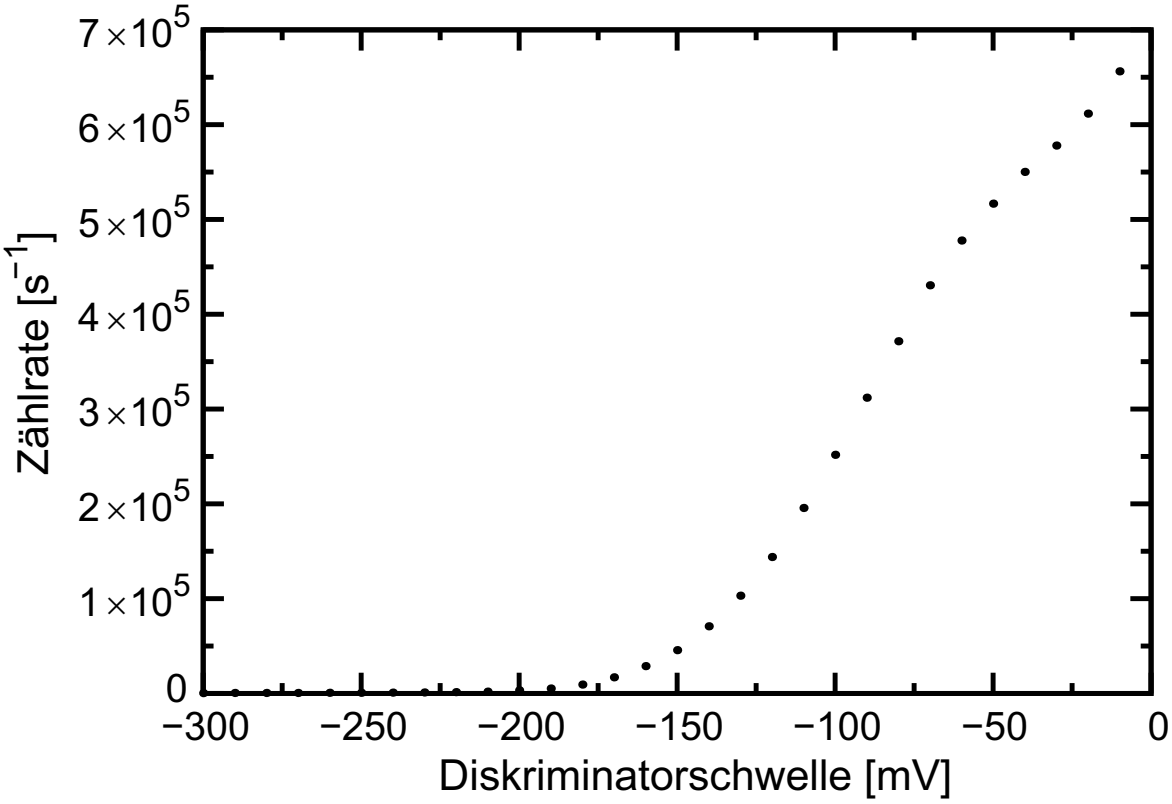

Abbildung 3.6: Gezählte Photonen pro Sekunde in Abhängigkeit von der Diskriminatorschwelle. Die am Photomultiplier angelegte Spannung beträgt 2,7 kV. Der mit Wurzel aus der Zählrate angenommene Fehler ist in diesem Bild nicht zu sehen.

in mehreren Stufen verstärkt.

3.4 Die Detektionsschwelle

Beim Setzen der richtigen Diskriminatorschwelle des Multi-Channel Scalers ist darauf zu achten, dass die Schwelle möglichst niedrig gesetzt wird um möglichst alle Photonen zu detektieren. Gleichzeitig sollte dabei aber Rauschen nicht zur Zählrate beitragen und möglichst wenige von den hohen Pulsen mehrfach gezählt werden, weil diese trotz Snubber im Vergleich zu der Höhe der kleinsten Pulse noch signifikantes Ringing besitzen.

Zum Bestimmen der besten Diskriminatorschwelle wird ein sogenanntes integrales Pulshöhenspektrum aufgenommen [Ham06], das die Zählrate in Abhängigkeit von der Diskriminatorschwelle darstellt. Ein solches integrales Spektrum ist in Abbildung 3.6 dargestellt. Das hier verwendete Licht bei Lyman-α wurde von einer Deuteriumlampe erzeugt und von einem Monochromator spektral gereinigt (sieh Kapitel 4). Durch die hoch gewählte Spannung am Photomultiplier von 2,7 kV, die gute Erdung und Abschirmung des Aufbaus und durch die rauscharme weitere Verstärkung des Signals, spielen sogenannte Dunkelcounts, das sind Counts die auch ohne Lichteinfall gezählt

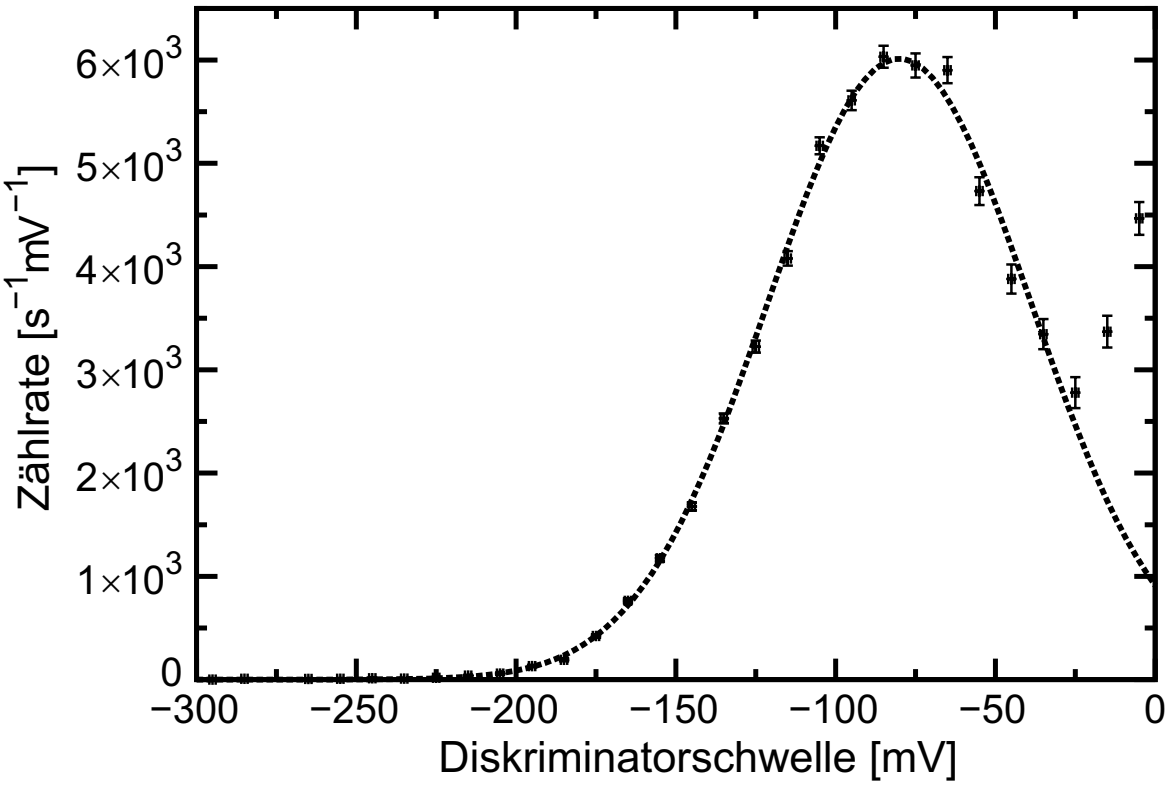

Abbildung 3.7: Gezählte Photonen pro Sekunde in Abhängigkeit von der Pulshöhe. Die am Photomultiplier angelegte Spannung beträgt 2,7 kV. Der Fehler der Diskriminatorschwelle wurde als ±1 mV angenommen. Der Fehler der Zählrate wurde aus dem Fehler des integralen Spektrums (Abbildung 3.6) bestimmt. Für den gaußförmigen Fit wurden die beiden letzten Messpunkte nicht berücksichtigt, weil sie aus Mehrfachcounts von hohen Pulsen resultieren.

werden, bei der hier gezeigten Messung keine Rolle. Bei einer Diskriminatorschwelle von −10 mV wurden in dieser Messreihe ohne Lichteinfall nur 300 Counts/s gezählt. Zu niedrigeren Diskriminatorschwellen steigt die Zahl der Dunkelcounts jedoch rasch an und es wurden in einer ähnlichen Messreihe bei −6 mV schon 10^5 Dunkelcounts/s gezählt.

Von dem integralen Pulshöhenspektrum wird dann die Ableitung nach der Diskriminatorschwelle gebildet. Dabei wird die Steigung zwischen zwei Messpunkten linear bestimmt. Abbildung 3.7 zeigt dieses differentielle Pulshöhenspektrum. Dieses Spektrum ist wie folgt zu interpretieren.

Die Amplitude, bei der die meisten Pulse in dieser Messreihe vorkommen beträgt 80 mV. Zu höheren und niedrigeren Diskriminatorschwellen nimmt die Zahl der Pulse bei einer bestimmten Amplitude wieder ab. Weil die Verstärkung einer Dynode des Photomultipliers näherungsweise poissonverteilt ist [Ham06], kann durch die große Zählrate die Verstärkung des gesamten Photomultipliers in guter Näherung als gaußverteilt angenommen werden. An das differentielle Pulshöhenspektrum kann also, wie in Abbildung 3.7 geschehen, eine Gaußkurve angefittet werden. Die Fläche unter dem Gaußfit

steht für die gesamte Zahl der mit dem Photomultiplier erzeugten Pulse pro Sekunde. Man erkennt, dass der Teil der Fläche, mit Amplituden oberhalb des lokalen Minimums der Messkurve bei $-25\,\mathrm{mV}$, wesentlich größer ist, als der Teil der Fläche mit kleineren Amplituden. Deshalb wird bei einer Diskriminatorschwelle von $-25\,\mathrm{mV}$ der größte Teil der erzeugten Pulse detektiert. Für niedrigere Amplituden nimmt die Zahl der Pulse pro Sekunde und Millivolt wieder zu. Diese Zunahme ist auf ein nicht vollständig unterdrücktes Ringing zurückzuführen. Betrachtet man den Ausgang des Verstärkers nach dem Diskriminator auf dem Oszilloskop, so kann der Anteil an Mehrfachcounts an der gesamten Zählrate bestimmt werden. Bei $-25\,\mathrm{mV}$ Diskriminatorschwelle betrug dieser Anteil hier $7\,\%$. Die Wahl der Diskriminatorschwelle im Minimum des differenziellen Pulshöhenspektrums stellt also einen guten Kompromiss zwischen dem Zählen möglichst vieler Counts und der Unterdrückung von Doppelcounts dar.
Die optimale Diskriminatorschwelle sollte jedoch im Falle einer Änderung der Messkonfiguration neu bestimmt werden. Das liegt daran, dass die Form der vom Photomultiplier erzeugten und nachverstärkten Pulse nicht immer gleich ist. Sie hängt einerseits von den nachfolgenden Verstärkerstufen und dem verwendeten Photomultiplier ab[2] und ändert sich zudem nochmals bei jedem Umbau des Steckers und der daranhängenden Elektronik von einem Photomultiplier zum anderen. Deshalb sollte nach jedem Umbau zunächst der Snubber an die neue Signalform angepasst und dann ein Pulshöhenspektrum zur Bestimmung der optimalen Diskriminatorschwelle aufgenommen werden. Diese Messung des Pulshöhenspektrums wurde allerdings mittlerweile automatisiert, so dass sie nicht mehr viel Zeit in Anspruch nimmt.

[2]Es werden ein Photomultiplier Model R6835 an der Lyman-α-Apparatur und ein Vorgängermodel R1459 am Lyman-α-Transmissions-Teststand verwendet.

Kapitel 4

Teststand zur Messung der Transmissivität optischer Komponenten bei 122 nm

Von der Erzeugung der Lyman-α-Strahlung bis zu ihrem Nachweis oder später einmal bis zur Kühlung von Antiwasserstoff, durchläuft das Licht unterschiedliche optische Komponenten (Kapitel 5.5). Für das Experiment ist es aus mehreren Gründen wichtig, die Transmissivität dieser Komponenten für das erzeugte vakuum-ultraviolette (VUV) Licht messen zu können. Zum einen können die verwendeten Optiken im Laufe der Zeit ihre Transparenz für das erzeugte Licht nahezu vollständig verlieren [EWH99]. Zum anderen ist es für eine Abschätzung der erzeugten Leistung bei Lyman-α wichtig, die Transmissivität aller Elemente zu kennen. Darum wurde ein Teststand aufgebaut, der solche Transmissionsmessungen für verschiedene optische Komponenten bei 121,56 nm ermöglicht.

4.1 Aufbau des Teststandes

Abbildung 4.1 zeigt in einer schematischen Zeichnung, auf welche Weise der Teststand realisiert wurde. Eine Deuteriumlampe (Hamamatsu L7293-50) mit einem Austrittsfenster aus MgF_2 liefert ultraviolettes Licht von etwa 115 nm bis 400 nm. Um auch den VUV-Anteil dieses Lichts ($\lambda \leq 200\,\text{nm}$) nutzen zu können, muss sich der gesamte Testaufbau im Vakuum befinden. Weil die Transmissivität optischer Komponenten genau bei Lyman-α bestimmt werden soll, muss aus dem Spektrum der Lampe zunächst die gewünschte Wellenlänge selektiert werden. Hierzu wird ein evakuierbarer Gittermonochromator (McPherson Model 218) verwendet. Das Licht tritt durch einen einstellbaren Eintrittsspalt in den Monochromator ein und fällt auf einen zylindrischen Spiegel. Dieser kollimiert das Licht und lenkt es auf ein drehbar gelagertes Reflexionsgitter mit 1200 Gitterlinien pro Millimeter. Je nach Drehwinkel des Gitters wird Licht einer anderen Wellenlänge unter einem Winkel auf einen zweiten zylindrischen Spiegel

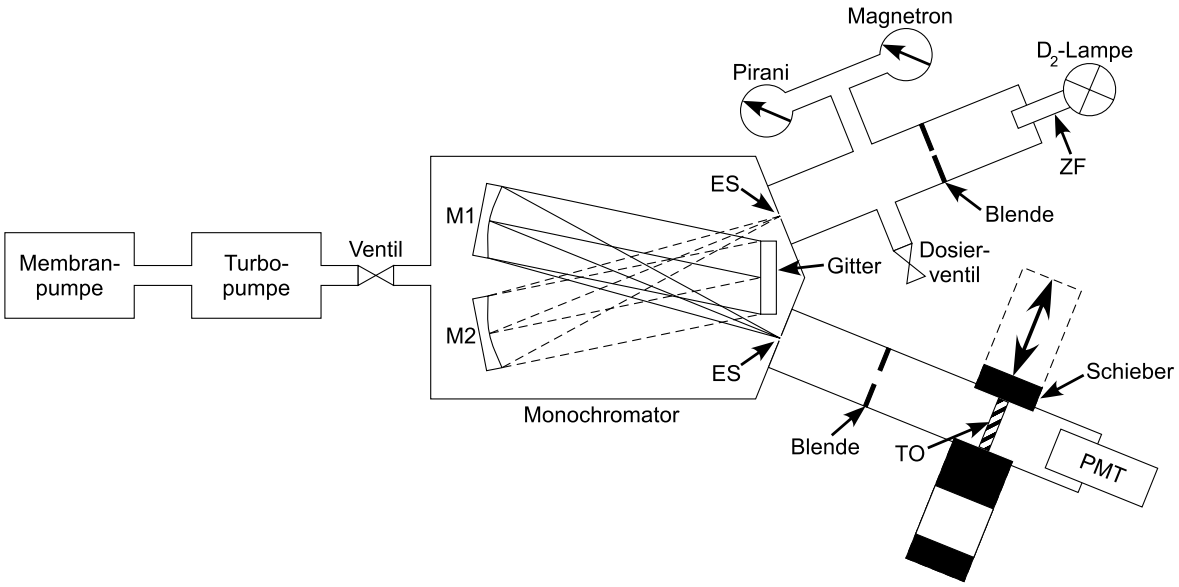

Abbildung 4.1: Aufbau des Teststandes zur Messung der VUV-Transmissivität. *M1, M2: Spiegel zur Kollimation und Fokussierung; ES: einstellbarer Schlitz; ZF: zylindrischer Fortsatz der Deuteriumlampe; PMT: Photomultiplier; TO: zu testende Optik.*

reflektiert, unter dem dieser das Licht auf einen einstellbaren Austrittspalt fokussiert. Um unerwünschte, durch den Monochromator transmittierte, Streustrahlung zu vermeiden, werden jeweils eine Blende zwischen Lampe und Monochromator ($\varnothing = 2\,\mathrm{mm}$) und Monochromator und zu testendem Objekt ($\varnothing = 10\,\mathrm{mm}$) platziert. Diese Blenden sind zwei Kupferscheiben mit jeweils einer Bohrung in der Mitte, die für möglichst gute Unterdrückung von Streustrahlung als Dichtringe beim Zusammenbau des Vakuumsystems benutzt werden. Das nach dem Monochromator spektral gereinigte Licht passiert dann das zu testende Objekt und wird danach von einem Photomultiplier mit MgF_2-Fenster (Hamamatsu R6835) detektiert (siehe Kapitel 3).

Beim Testen der Deuteriumlampe wurde festgestellt, dass ihre Leistung zeitlich nicht konstant ist. Darum wurde der Teststand so aufgebaut, dass es möglich ist die Transmission des Testobjekts mit einer zeitnahen Messung der Leistung der Deuteriumlampe zu normieren. Zu diesem Zweck wurde ein Schieber [Nei09] in den Vakuumaufbau integriert, der zwei Aperturen besitzt (Abbildung 4.1). Eine dieser Aperturen wird leer gelassen und in dem anderen wird die zu testende Optik platziert. So kann schnell ($t \approx 10\,\mathrm{s}$) zwischen dem Testobjekt und einer freien Apertur hin und her geschaltet werden.

Um den Aufbau bis zum benötigten maximalen Druck zu evakuieren (Kapitel 4.4.2) wird als Vorpumpe eine Membranpumpe (Pfeiffer MVP 055-3) und als Hochvakuumpumpe eine Turbo-Dragpumpe (Pfeiffer TMH 071 P) eingesetzt. Dabei wird der Druck von einem Pirani-Vakuummeter (Leybold TR 216) und einem Magnetron-Vakuummeter (BOC Edwards AIM-X) gemessen. Es ist wichtig das Magnetron nicht auf der Seite des Photomultipliers am Teststand anzubringen. Durch seine Gasentladung erzeugt es kurzwellige Strahlung, die vom Photomultiplier als Untergrund nachgewiesen werden

kann. Bringt man es, wie hier geschehen auf der anderen Seite des Monochromators an, so wird dieser Untergrund unterdrückt.

4.2 Vakuumeinbau der Deuteriumlampe

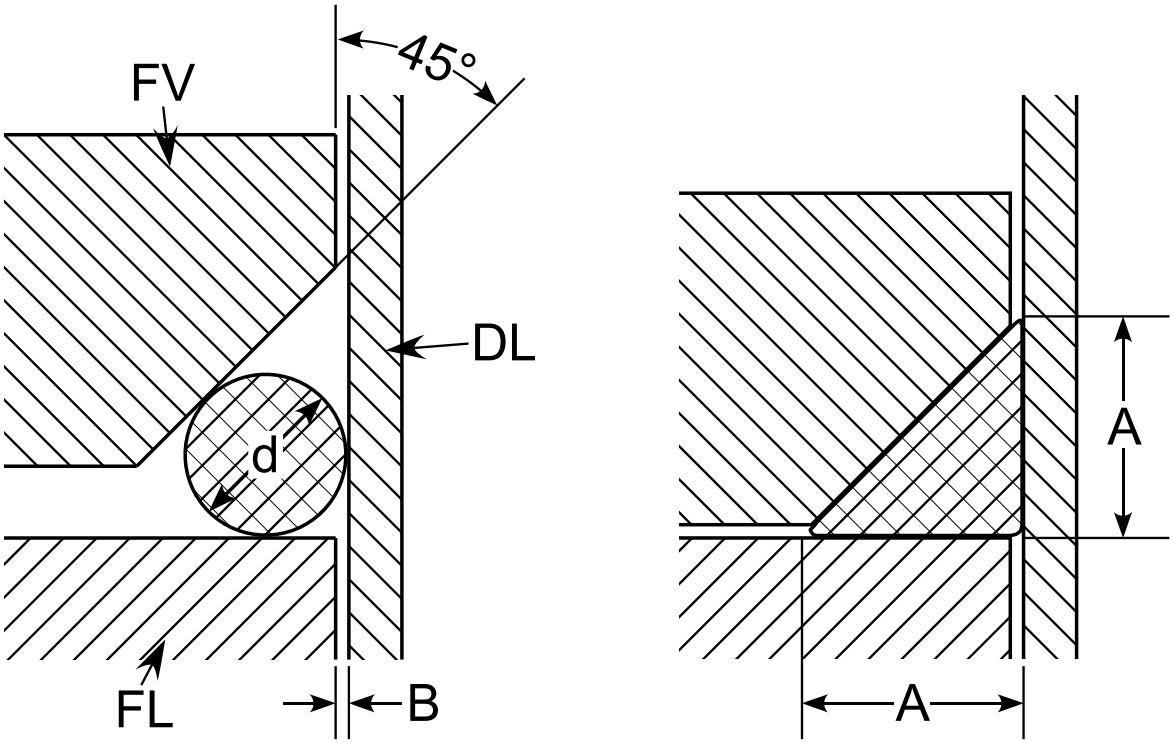

Abbildung 4.2: Prinzip der Dichtung der zylindrischen Nase der Deuteriumlampe. *FV: Flansch Vakuumseite; DL: Wand der Nase der D_2-Lampe; FL: Flansch Luftseite.*

Eikema et al. berichten, dass organische Moleküle in Verbindung mit UV-Licht zu VUV-undurchlässigen Schichten auf Optiken führen können [EWH99, EWH01]. Deshalb wurde die Deuteriumlampe, die ohne Vakuumanschluss geliefert wird, mit einer Indiumdichtung vakuumgedichtet, um prinzipiell die Möglichkeit zu haben einen komplett gummifreien Teststand aufzubauen. Die Deuteriumlampe besitzt einen zylindrischen Fortsatz, an dessen Ende sich das MgF_2-Fenster der Lampe befindet (Abbildung 4.1). An diesem zylindrischen Fortsatz, der im Weiteren einfach als Nase der Deuteriumlampe bezeichnet wird, wird die Indiumdichtung angebracht.
In Abbildung 4.2 ist das Prinzip der verwendeten Dichtung dargestellt, wie es auch in [Rot94] beschrieben ist. Im linken Teil der Abbildung ist ein Schnitt der beiden verwendeten Flansche und der Nase der Deuteriumlampe zu sehen. Da der Aufbau rotationssymmetrisch ist, wird hier nur eine Wand der Nase gezeigt, die durch eine Bohrung in der Mitte der beiden Flansche geschoben wird. Der Flansch, der auf der Luftseite liegt, wurde so gefertigt, dass seine dichtende Fläche senkrecht zur Wand der Lampe liegt. Der Flansch auf der Vakuumseite dagegen, ist auf der zu dichtenden Seite in einem Winkel von 45° schräg abgedreht. Dadurch bilden die beiden Dichtflächen der Flansche

zusammen mit der Wand der Lampe eine dreieckige Querschnittsfläche in die entweder ein Gummi-O-Ring oder wie in diesem Fall Indiumdraht gelegt wird. Mit sechs Schrauben der Größe M6, angeordnet auf einem Kreis mit Radius $R = 70\,\text{mm}$, werden die beiden Flansche dann mit einer durch das Drehmoment an den Schrauben definierten Kraft aneinander gezogen. Dabei wird, wie im rechten Teil der Abbildung 4.2 gezeigt, das dichtende Element verformt und gegen die Wand der Lampe gedrückt. Bevor die Lampe selbst mit Indium abgedichtet wurde, wurde zunächst zusätzlich zu den beiden Flanschen eine zylindrische Testnase aus Edelstahl von der Werkstatt gefertigt. Diese hat mit $d = 15{,}25\,\text{mm}$ den gleichen Durchmesser wie die Nase der Deuteriumlampe. Bei den Tests stellt sich heraus, dass es für eine Indiumdichtung wichtig ist, die Bohrung in den Flanschen möglichst genau an die Dicke der Nase anzupassen und damit den Abstand B aus Abbildung 4.2 möglichst gering zu halten. Bei zu großem Abstand B weicht das Indium bei der Kompression zu stark in den Spalt zwischen Lampe und Flansch aus und die Dichtung wird nicht leckdicht. [Rot94] schreibt, dass im Falle eines Dichtringes aus Gummi für den Durchmesser d des O-Rings

$$A \approx 1{,}32 \times d \tag{4.1}$$

gelten muss. Die Größe A ist im rechten Teil von Abbildung 4.2 definiert. Ist A größer als vorgeschrieben, dann ist die Kompressionsrate des O-Rings nicht ausreichend um die Dichtung leckdicht zu bekommen und man riskiert große Blindlecks. Ist A hingegen kleiner als vorgeschrieben, so drückt sich der Dichtring vor allem zwischen die beiden Flansche und eine Dichtung mit begrenzter Kompression des O-Rings ist nicht mehr möglich. Nach dieser Vorgabe wurde die Aussparung am Flansch der Vakuumseite passend zu dem verwendeten Indiumdraht (Advent Research Materials Limited) mit Durchmesser 2,0 mm von der Institutswerkstatt ausgedreht. Damit lies sich jedoch zunächst keine leckdichte Dichtung fertigen. Stattdessen stellt sich heraus, dass es, im Falle von Indium als Dichtmaterial, besser ist wesentlich mehr Indium als nach Gleichung 4.1 vorgeschrieben zu verwenden. Wurden nämlich zwei Ringe aus dem Indiumdraht übereinander um die Nase gelegt und die Flansche dann durch Anziehen der Schrauben gegeneinander gepresst, so wurde die Dichtung schon ab einem Drehmoment von 2 Nm an den M6-Schrauben leckdicht, wobei es keinen Unterschied gemacht hat, ob die Testnase oder später die Nase der Deuteriumlampe gedichtet wurde.
Bemerkenswert ist außerdem noch, dass es zur Formung der Ringe aus Indium genügt hat, den Indiumdraht in der richtigen Länge schräg abzuschneiden und die beiden Enden des Drahtstückes zusammenzupressen. Die beiden Ringe aus Indium wurden dann so auf die Nase geschoben, dass sich ihre Schnittstellen gegenüber voneinander befunden haben. Wurden die Flansche wieder von der Nase entfernt und die Dichtung inspiziert, konnte allerdings weder erkannt werden wo sich einmal die Schnittstellen befunden hatten, noch konnte man sehen, dass die Dichtung einmal aus zwei separaten Indiumringen bestanden hatte.

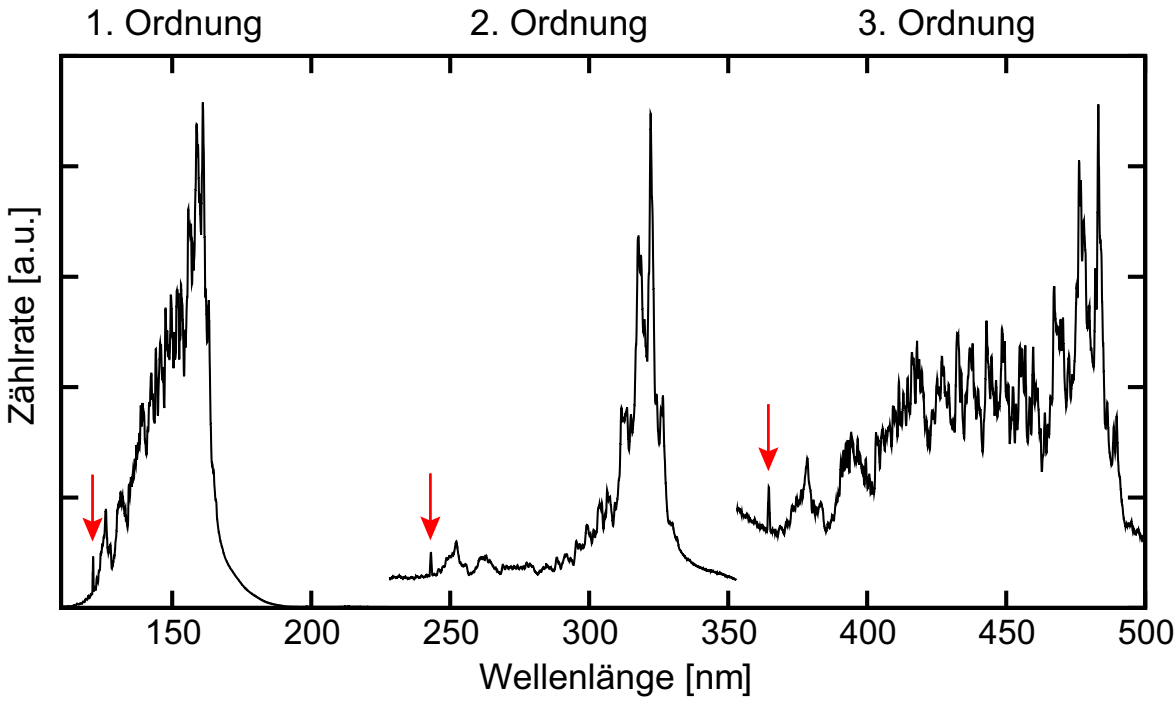

Abbildung 4.3: Mit dem Teststand aufgezeichnetes Spektrum der Deuteriumlampe. Die Bereiche der Gitterreflexionen zweiter und dritter Ordnung des Deuterium-VUV-Spektrums sind vergrößert dargestellt. Rote Pfeile markieren die Reflexion erster bis dritter Ordnung der Deuterium-Lyman-α-Linie.

4.3 Eichung des Monochromators

Für einen Transmissionstest bei einer bestimmten Wellenlänge ist es von entscheidender Bedeutung den Zusammenhang zwischen der Gitterstellung des Monochromators und der damit selektierten Wellenlänge zu kennen. Der Gitterwinkel kann sowohl mit der Hand an einem Stellrad, das über ein Übersetzungssystem mit dem Gitter verbunden ist, als auch mit Hilfe eines Motors im Monochromator durchgefahren werden. Der Monochromator selbst hat eine Anzeige, die laut Hersteller in einem linearen Zusammenhang zu der eingestellten Wellenlänge steht. Will man diesen linearen Zusammenhang überprüfen und einen Zusammenhang der Anzeige mit der eingestellten Wellenlänge herleiten, so benötigt man mindestens 3 Messpunkte, an denen die Wellenlänge bekannt ist. Mit [KP80] kann im Spektrum unserer Deuteriumlampe die Deuterium-Lyman-α-Linie bei 121,53 nm [JKL$^+$05] identifiziert werden (Abbildung 4.3). Fährt man nun den Gitterwinkel zu größeren Wellenlängen durch, so kann man das VUV-Molekülspektrum der Lampe und die Deuterium-Lyman-α-Linie über dem kontinuierlichem Hintergrund der Lampe im UV noch ein zweites und drittes Mal als Reflexionen zweiter und dritter Ordnung des Reflexionsgitters beobachten. Das zweite und dritte Hauptmaximum der Deuterium-Lyman-α-Linie entspricht Wellenlängen erster Ordnung von 243,07 nm beziehungsweise 364,60 nm. Somit kann eine Geradengleichung an die Linienmaxima angefittet werden, die die Skala des Monochromators in Beziehung zur gemessenen

Wellenlänge setzt:

$$\lambda = 0{,}327\,\text{nm} + 0{,}0249985\,\text{nm} \times \text{Anzeige Monochromator} \tag{4.2}$$

Diese Gerade weicht um maximal +(−) 0,016 nm (0,031 nm) von den gemessenen Datenpunkten ab. Bei der Einstellung der gewünschten Wellenlänge ist außerdem zu beachten, dass das Übersetzungssystem des Stellrades zum Gitter Spiel hat und so der Offset der Geraden in Gleichung 4.2 mit einem Fehler von ±0,12 nm anzugeben ist. Die Steigung der Geraden bleibt jedoch immer dieselbe.
Die Wellenlängenachsen in den beiden Abbildungen 4.3 und 4.4 wurden anhand des hier hergeleiteten Zusammenhangs aus der Anzeige des Monochromators berechnet. Weil die Anzeige des Monochromators nicht direkt ausgelesen werden kann, wurde für die Zuordnung der Messpunkte ausgenutzt, dass die Anzeige mit dem Motor des Monochromators mit sehr konstanter Geschwindigkeit durchfahren werden kann.

4.4 Messungen mit dem Transmissionsstand

4.4.1 Transmissionsmessungen bei Lyman-α

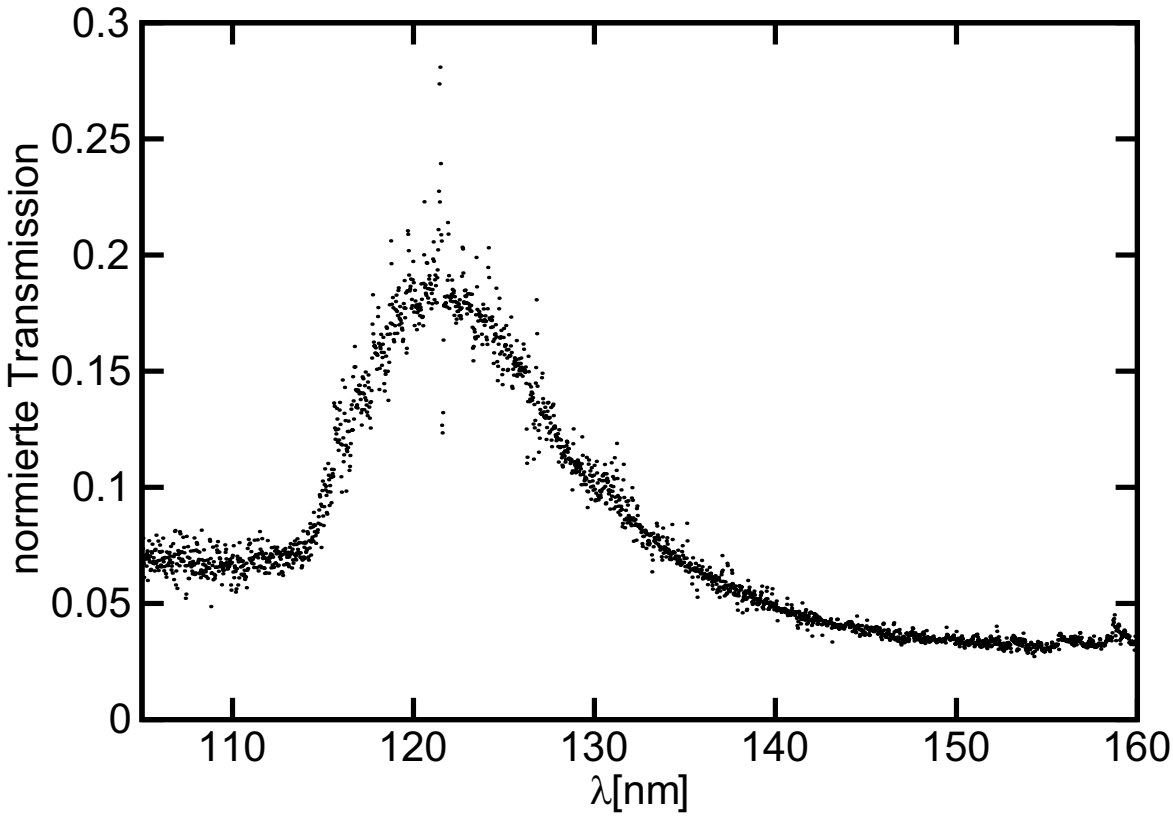

Abbildung 4.4: Transmissionsspektrum des für den Lyman-α-Nachweis verwendeten 122-N-1D F2-Filters.

Abbildung 4.4 zeigt die normierte Transmissionskurve des für die Unterdrückung der fundamentalen Strahlen verwendeten 122-N-1D F2 Lyman-α-Filters. Zur Messung

dieser Kurve wurde mit Hilfe des Monochromators die Wellenlänge einmal mit und einmal ohne Filter durchgefahren und die Messwerte beider Datensätze durcheinander geteilt. An der Spitze der Kurve gibt es durch die Deuterium-Lyman-α-Linie einige stark abweichende Punkte, die von einer nicht ganz exakten Übereinstimmung der Wellenlängen der einzelnen Messpunkte bei der Messung mit und ohne Substrat kommen. Auch das Rauschen des restlichen Signals, ist zum Teil der Struktur des Signals der Deuteriumlampe und den nicht exakt gleichen Messpunkten der beiden Messreihen geschuldet. Aus dem Graphen lässt sich die Breite dieses Filters zu etwa 10 nm bestimmen.

In der Region von 105 nm bis etwa 112 nm fällt ein konstanter Untergrund auf, wo aufgrund der Transmissionskante von MgF_2 kein Signal mehr gemessen werden dürfte [HM69]. Dieser Untergrund ist nicht nur im normierten Signal, sondern auch im ursprünglichen Signal ohne Filter, in der folgenden Diskussion auch einfach nur als „Signal“ bezeichnet, nahezu konstant und auch noch zu deutlich niedrigeren Wellenlängen vorhanden. Weil der Filter etwa 7 % des Untergrunds transmittiert, muss dieser einen großen Anteil im Bereich um 120 nm besitzen. Stellt man den Monochromator auf Werte um 200 nm bis 220 nm, so ist dort der VUV-Untergrund im Signal auf etwa die Hälfte abgesunken. Dies lässt sich bestimmen, indem zunächst das Signal bei evakuiertem Teststand gemessen wird und dann von diesem der Wert des Signals bei belüftetem Teststand subtrahiert wird. Wegen der Konstanz des Untergrunds auch zu niedrigeren Wellenlängen und seinem Vorhandensein bei hohen Wellenlängen, kann man davon ausgehen, dass der Untergrund bei Lyman-α in etwa gleich dem bei 110 nm ist. Neben der Deuterium-Lyman-α-Linie beträgt der Untergrund also etwa 15 % der Höhe des Signals und verfälscht somit stark die Transmissionsmessung der Filter. Der Anteil des Signals am Untergrund ist nicht ganz unabhängig davon, wie weit die Schlitze des Monochromators geöffnet sind, liegt aber doch immer zwischen 10 % und 16 %. Hat man die Schlitze des Monochromators auf 40 μm geöffnet und erlangt dadurch eine relativ hohe Auflösung des Monochromators von etwa 0,11 nm[1], so erhält man auf der Deuterium-Lyman-α-Linie etwa neunmal mehr Signal als daneben. Dadurch beträgt der Untergrund dann nur noch etwa 1,7 % des Signals und fällt nicht mehr so stark ins Gewicht.

Der Unterschied von 121,56 nm − 121,53 nm = 0,03 nm zwischen der Lyman-α-Linie für Wasserstoff und der Deuterium-Lyman-α-Linie ist mit dem Monochromator nicht auflösbar und durch die Breite der Transmissionskurven der Filter auch nicht signifikant. Zur Messung der Transmission von Filtern, Fenstern und Linsen ist es deshalb eine gute Vorgehensweise zunächst den Untergrund beispielsweise bei 110 nm mit und

[1]Diese Auflösung wurde anhand der Breite der beim Scan gemessenen Deuterium-Lyman-α-Linie bestimmt und passt gut zu der, im Benutzerhandbuch des Monochromators angegeben, Auflösung von 2,65 nm pro Millimeter Schlitzöffnung, bei Verwendung eines Gitters mit 1200 Strichen pro Millimeter. Diese lineare Formel gilt bis etwa 50 μm Schlitzöffnung. Die Auflösung für 10 μm Schlitzöffnung wird dann zu 0,06 nm angegeben.

ohne Filter zu bestimmen. Dann sollte man sich zur Einstellung der richtigen Wellenlänge und um dem Untergrund aufgrund des nicht konstanten Signals möglichst wenig Signifikanz zu geben, auf die Deuterium-Lyman-α-Linie setzen, die mit Hilfe von Gleichung 4.2 leicht gefunden werden kann. Dort misst man nun das Signal mit und ohne Testobjekt, zieht jeweils den Untergrund von diesem Signal ab und kann dann die Transmission der Filter durch Division dieser beiden Werte berechnen. Aufgrund der Schwankungen des Signals lässt sich so die Transmission zu etwa 5 % relativer Genauigkeit bestimmen. Somit wurde die Transmission der im Lyman-α-Erzeugungs- und Detektions-Aufbau verwendeten Filter und der Linse zu den Werten, die in der folgenden Tabelle 4.1 zusammengefasst sind, bestimmt. Damit entspricht der 122-N-

Tabelle 4.1: Transmissivität der im Lyman-α-Aufbau verwendeten VUV-Optiken bei Lyman-α.

getestetes Element	Transmissivität [%]
Lyman-α-Filter 122-N-1D F2	20,5
Lyman-α-Filter 122-XN-1D F3	14,5
Lyman-α-Filter 122-XN-1D XF2	3,5
MgF_2-Linse	68

1D F2-Filter mit seiner Transmission bei Lyman-α in etwa dem Wert der Beispielkurve des Herstellers und ist deutlich besser als die minimal garantierten 15 % Transmissivität. Der 122-XN-1D F3-Filter ist zwar als XN-Filter beschriftet, von seiner gemessenen Transmission passt er aber eher zu den heute vom Hersteller als FN122-VN-1D bezeichneten Filtern, so dass er möglicherweise falsch beschriftet wurde. Die Beispielkurve eines dieser Filter zeigt eine Transmissivität bei Lyman-α von etwa 13 %, wobei hier die garantierte Transmissivität bei 10 % liegt. Der 122-XN-1D XF2-Filter dagegen liegt mit seiner Transmissivität deutlich unter dem Wert der Beispielkurve eines dieser Filter von etwa 6 % und auch unterhalb der garantierten 5 %.
Die drei verwendeten Lyman-α-Filter und die MgF_2-Linse schwächen das im Vier-Wellen-Mischen erzeugte Licht vor seiner Detektion also insgesamt um einen Faktor $7{,}1 \times 10^{-4}$ ab.
Interessant wäre noch die Unterdrückung der Filter bei der Wellenlänge des UV-Lasers bei 253,7 nm zu bestimmen, aber aufgrund der geringen Empfindlichkeit des Photomultipliers bei dieser Wellenlänge und der starken Unterdrückung der Filter kann hier mit Filter kein Signal mehr über dem Untergrund gemessen werden.

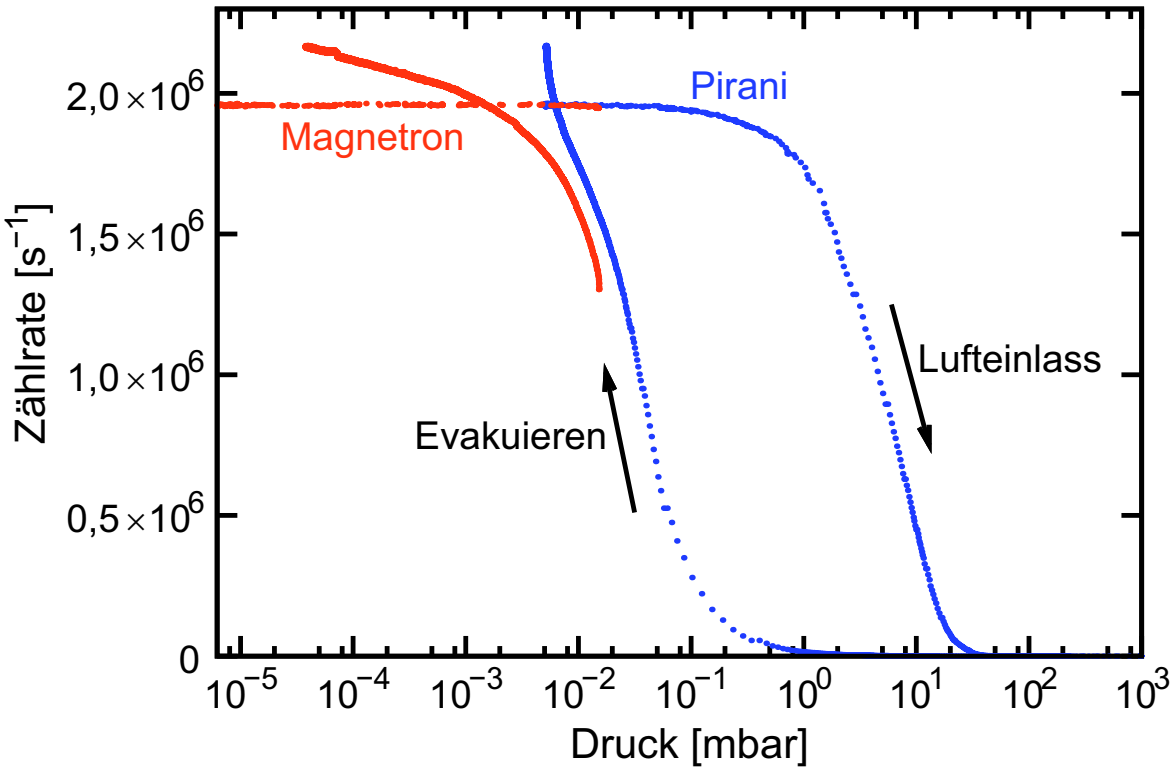

Abbildung 4.5: Blaue (orange) Kurve: Signal bei Lyman-α über dem, mit Hilfe des Pirani-Vakuummeters (Magnetron-Vakuummeters), gemessenen Druck im Teststand. *Die obere Kurve zeigt die Höhe des Signals beim Einlassen von Luft in den Teststand. Bei der unteren Kurve wird der Teststand wieder abgepumpt.*

4.4.2 Maximaler Druck beim Abpumpen von Luft und beim Einfüllen eines Puffergases für Experimente bei 122 nm

Wie schon erwähnt, wird Licht unter etwa 200 nm von Luft absorbiert, so dass zur Arbeit mit dem Teststand, aber auch für die Lyman-α-Quelle, die Apparatur auf einen genügend niedrigen Druck abgepumpt werden muss. Abbildung 4.5 zeigt eine Messung, bei der zunächst über das Dosierventil (Abbildung 4.1) Luft in den Teststand eingelassen wird, dann das Ventil geschlossen und der Teststand wieder abgepumpt wurde. Das Signal wurde dabei über dem mit dem Pirani-Vakuummeter gemessenen Druck aufgezeichnet, welches als niedrigsten Wert 5×10^{-3} mbar ausgibt und bis etwa 1×10^{-2} mbar zuverlässig misst. Deshalb wurde zusätzlich auch der Druck aufgezeichnet, der mit dem Magnetron-Vakuummeter gemessen wurde. Die Belüftungsmessung startete bei einem Druck von $6{,}2 \times 10^{-6}$ mbar und die Messung des darauffolgenden Abpumpens endete bei $3{,}8 \times 10^{-5}$ mbar.

Deutlich zu sehen ist ein Unterschied zwischen der Kurve bei der Belüftung und der Kurve beim anschließenden Abpumpen, der in etwa zwei Größenordnungen im Druck ausmacht. Der Grund für diesen Unterschied können Ausgaseffekte der Apparatur sein. Das Ausgasen von nicht-ausgeheizten Systemen wird von Wasser dominiert [LD93].

Bei einer Feuchtigkeit der Raumluft von etwa 50 % und einer Temperatur von 20 °C hat Wasser einen Anteil von etwa 1,2 % am Luftdruck [SH82]. Wasser hat also beim Lufteinlass einen deutlich geringeren Anteil am gemessenen Gesamtdruck, als beim Abpumpen. Weil Wasser, im Vergleich zu anderen Gasen, bei Lyman-α einen relativ großen Absorptionsquerschnitt von $1{,}6 \times 10^{-17}\,\mathrm{cm}^2$ hat [VV01, Pre40], kann so also ein Unterschied in den beiden Messkurven zustande kommen. Zum Vergleich kann man eine Atmosphäre aus reinem Wasserdampf annehmen. Bei einem Druck von 0,01 mbar und einer Temperatur von 20 °C werden bei einer solchen Atmosphäre auf einer optischen Weglänge von 160 cm, das ist die Länge des Lichtweges durch den Teststand, 53 % des eingestrahlten Lichts transmittiert.
Am Ende der Messreihe wurden etwa 10 % mehr Counts/s als am Anfang gezählt. Dieser Unterschied ist in dem Drift der Leistung der Deuteriumlampe begründet. Durch den Drift der Lampe kann keine eindeutige Empfehlung ausgesprochen werden, wie weit der Teststand für Messungen abgepumpt werden sollte. Nimmt man an, dass die Kurvenform beim Evakuieren ohne Drift der Lampe in etwa der Kurvenform beim Lufteinlass entspricht, so erhält man keine signifikante Absorption mehr, wenn man den Teststand auf 1×10^{-4} abpumpt, wofür in etwa vier Stunden benötigt werden.

In die Erzeugungs- beziehungsweise Detektionsbereiche der Lyman-α Apparatur werden die Puffergase Helium 5.0 und Argon 5.0 eingelassen. Das soll einerseits verhindern, dass im Erzeugungsbereich der Quecksilberdampf an die Ein- und Austrittsfenster gelangt, dort kondensiert und die Fenster dadurch undurchsichtig macht. Andererseits soll es die Bildung von VUV-undurchlässigen Schichten auf den VUV-Optiken verhindern [EWH01]. Die Edelgase sind allerdings selbst nicht ganz rein, sondern mit anderen Restgasen, unter anderem Wasser, verunreinigt. Die Bezeichnung 5.0 sagt aus, dass die Edelgase einen Anteil von bis zu 10^{-3} % an anderen Gasen enthalten. 100 mbar Puffergas bedeuten also, dass sich bis zu 10^{-3} mbar Restgas im System befinden können. So könnte der Puffergaseinlass selbst zu signifikanter Absorption der erzeugten VUV-Strahlung führen. Dies wird zwar aufgrund der zuvor beschriebenen Messung der Transmission von Lyman-α in Abhängigkeit vom Druck nicht unbedingt erwartet, wurde aber dennoch nachgeprüft.
Um einen negativen Einfluss der Puffergase auszuschließen, wurde die Argon 5.0-Flasche an das Dosierventil angeschlossen, der Teststand bei geöffnetem Dosierventil abgepumpt, wodurch durch den Druckminderer hindurch auch direkt am Ventil der Argon-Flasche gepumpt wurde, dann das Ventil zu den Vakuumpumpen geschlossen und bis zu 1 bar Argon in den Teststand eingelassen. Dabei wurde keine druckabhängige Veränderung des durch den Teststand transmittierten Signals bei Lyman-α festgestellt. Geht man davon aus, dass das Heliumgas nicht unerwartet stärker verunreinigt ist, heißt dies also, dass die verwendeten Puffergase Argon 5.0 und Helium 5.0 keinen negativen Einfluss auf die Lyman-α-Transmission durch die Apparatur haben.

Kapitel 5

Die Lyman-α-Quelle

Im Folgenden wird das neue Festkörperlasersystem vorgestellt, mit dem nun erstmals Lyman-α-Strahlung unter optimaler Ausnutzung der Einphotonenresonanz im Quecksilber erzeugt werden kann (Abbildung 1.4). Dabei wird vor allem auf Aufbauten und Messungen näher eingegangen, die im Rahmen dieser Arbeit erstellt wurden. Des Weiteren werden in diesem Kapitel die technischen Aspekte der Lyman-α-Erzeugung und Detektion dargestellt.

5.1 Der Laser bei 253,7 nm

Zur optimalen Ausnutzung der Ein-Photonen-Resonanz bei der Lyman-α-Erzeugung wird ein möglichst leistungsstarker verstimmbarer Laser bei 253,7 nm benötigt. In einer früheren Lyman-α-Quelle wurde hierfür ein frequenzverdoppelter Ar^+-Ionenlaser verwendet, dessen Wellenlänge jedoch bei 257,3 nm lag, -16 THz von der 6^1S – 6^3P-Resonanz entfernt [EWH01]. Dies reduzierte die nichtlineare Suszeptibilität dritter Ordnung pro Atomdichte $\chi_a^{(3)}$ des Vier-Wellen-Misch-Prozesses und damit die erzeugte Lyman-α-Leistung (siehe Kapitel 2.5). Später wurde dieser Laser zur Untersuchung elektromagnetisch induzierter Transparenz durch einen Kr^+-Ionenlaser gepumpten frequenzverdoppelten Farbstofflaser bei der Wellenlänge des 6^1S – 6^3P-Übergangs ersetzt [Hen05]. Dieser eigens für den Einsatz des Farbstoffes Cumarin 30 mit 9-Methylanthracen umgebaute Coherent 699-21 Farbstofflaser war jedoch sehr wartungsaufwendig und lieferte zudem bei 253,7 nm nur einige mW frequenzverdoppelter Ausgangsleistung.
Eine leistungsstarke und zuverlässige Alternative bietet ein frequenzvervierfachter Yb:YAG Scheibenlaser, der für diese Lyman-α-Quelle der zweiten Generation aufgebaut wurde [SMW+07]. Abbildung 5.1 zeigt eine Skizze des Aufbaus dieses UV-Lasersystems. Der als fundamentale Laserquelle verwendete diodengepumpte Scheibenlaser der Firma ELS (Model VersaDisc 1030-50) lieferte eine Ausgangsleistung von 4,8 W bei 1014,8 nm. In einer ersten externen Verdopplungsstufe wird dieses Licht zunächst vom Infraroten ins Grüne bei 507,4 nm konvertiert. Der dafür verwendete

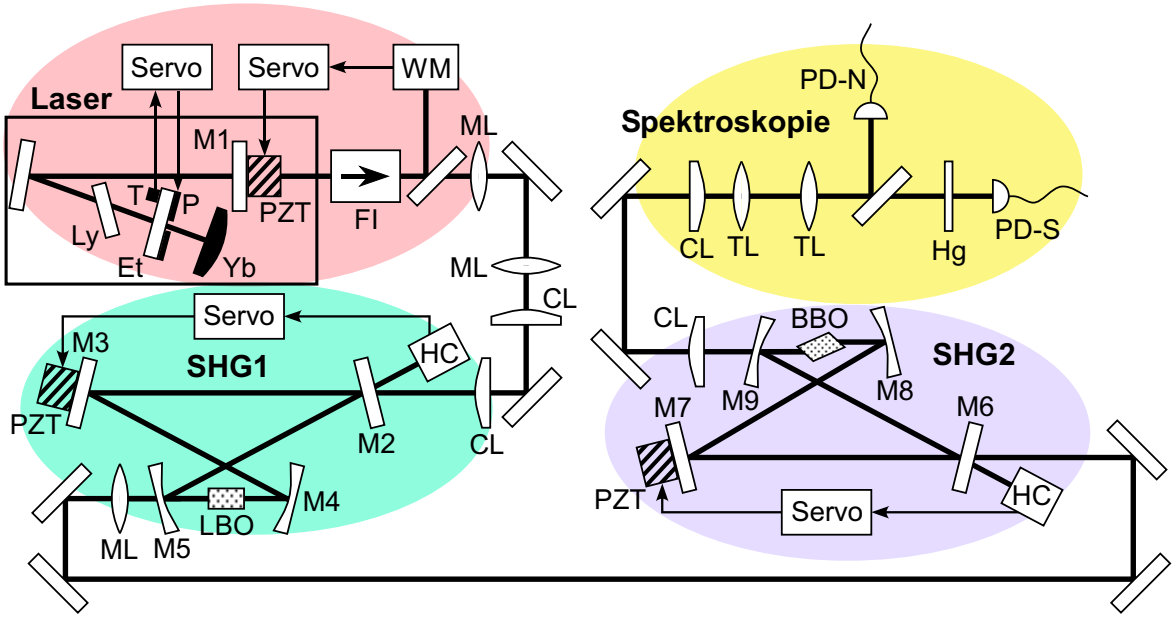

Abbildung 5.1: Aufbau des 254 nm-Lasers und der $6^1S - 6^3P$ Spektroskopie an Quecksilber. *Yb: Yb:YAG Scheibe; Et: Etalon; P: Peltierelement; T: Thermistor; Ly: doppelbrechender (Lyot-) Filter; M1-M9: Auskoppler des Lasers und Resonatorspiegel; PZT: Piezokeramiken; FI: Faradayisolator; WM: Wavemeter; ML, CL, TL: Linsen; SHG1, SHG2: erste und zweite Frequenzverdoppelungsstufe; HC: Einheit zur Erzeugung und Detektion des Hänsch-Couillaud-Fehlersignals; LBO, BBO: nichtlineare optische Kristalle; PD-N, PD-S: UV-Photodioden; Hg: Quecksilberdampfzelle.*

Überhöhungsresonator ist in Bow-Tie-Konfiguration aufgebaut. Seine optische Weglänge wird mit Hilfe des sogenannten Hänsch-Couillaud-Locks [HC80] auf ein vielfaches der fundamentalen Wellenlänge stabilisiert. Als nichtlineares optisches Medium wird ein 90° geschnittener, antireflexbeschichteter Typ I temperaturphasenfehlangepasster Lithium Triborat (LBO) Kristall der Firma Crystech verwendet. Um optimale Phasenfehlanpassung zu erreichen, muss dieser Kristall auf 224 °C geheizt werden, wozu er in einen Ofen eingebaut ist. Dieser Ofen ist von einem Hitzeschild umgeben, um Konvektion und damit eine Destabilisierung des Resonators zu vermeiden. Mit diesem Resonator konnte eine Ausgangsleistung von 3,0 W bei 507,4 nm erzeugt werden, was einer Konversionseffizienz von 62 % entspricht. Das konvertierte Licht wird dann in einen zweiten Überhöhungsresonator eingekoppelt, der wieder in Bow-Tie-Konfiguration aufgebaut ist und mittels Hänsch-Couillaud-Lock stabilisiert wird. Hier wird ein brewstergeschnittener, Typ I winkelphasenfehlangepasster Beta-Bariumborat (BBO) Kristall von Castech verwendet. Dieser wird auf 50 °C geheizt, um Kondensation von Wasserdampf auf seinen Oberflächen zu verhindern. Bei einer Eingangsleistung von 2,0 W grünen Lichts in den Verdoppelungsresonator konnten 750 mW stabile UV-Leistung erzeugt werden. Dies entspricht einer Konversionseffizienz von 38 %. Bei höheren Eingangsleistungen kommt es zu einer irreversiblen Degeneration des BBO-Kristalls und damit zu einem Abfall der erzeugten Leistung innerhalb eines Zeitraumes

von $\sim$10 min.
Es soll an dieser Stelle schon darauf hingewiesen werden, dass für die Lyman-α-Erzeugung eine geringere Leistung an UV-Licht verwendet wurde. Der Grund hierfür liegt in einer langsamen ($t \approx$2,5 Jahre) Degeneration der Yb:YAG-Scheibe des Scheibenlasers, die zu einer auf 2,0 W verminderten Ausgangsleistung bei 1014,8 nm und zu einem verschlechterten Strahlprofil führte. Daher stand bei 253,7 nm nur noch eine Leistung von 200 mW zur Verfügung.
Um den longitudinalen Einzelmodenbetrieb und das Scannen mit dem oben beschriebenen UV-Laser zu demonstrieren, wurde mit ihm eine Spektroskopie am 6^1S – 6^3P-Übergang in Quecksilber durchgeführt. Im folgenden Abschnitt soll nun näher auf Details des Lasers und im Speziellen darauf, wie das Scannen realisiert wurde, eingegangen werden.
Wie in Abbildung 5.1 gezeigt wird, ist der Laserresonator in einer gefalteten linearen Geometrie aufgebaut. Das aktive Lasermedium ist eine Yb:YAG-Scheibe, die auf einer Seite mit einer hochreflektierenden Beschichtung versehen ist, welche als einer der Endspiegel des Laserresonators fungiert. Zur Frequenzselektion beinhaltet der Laser einen Lyot-Filter (FWHM = 3 THz) und ein unbeschichtetes 5 mm langes Etalon (freier Spektralbereich 21 GHz, FWHM = 10 GHz). Der Lyot-Filter ist auf einer wassergekühlten Halterung angebracht und kann durch Rotation der optischen Achse verstimmt werden. Das Etalon wird über einer Änderung seiner Temperatur verstimmt, wobei ein Temperaturunterschied von $\Delta T = 8{,}6\,^\circ$C einem freien Spektralbereich entspricht. Stabilisiert wird die Temperatur des Etalons mit Hilfe einer Wasserkühlung und gleichzeitiger Heizung durch ein Peltierelement. Die Heizung wird über einen in einem Computerprogramm implementierten digitalen Regelkreis gesteuert. Die Länge des Laserresonators wird über eine Piezokeramik stabilisiert, die den Auskoppelspiegel bewegt. Das Fehlersignal für diesen Regelkreis wird von einem kommerziellen Wavemeter (High Finesse WS7) erzeugt.
Ein Scan der Laserfrequenz erfordert eine gleichzeitige Verstimmung des Etalons und der Resonatormoden mit aneinander angepassten Raten. Hierzu wird der Richtwert des Temperaturregelkreises des Etalons in kleinen Schritten verändert und zum Fehlersignal des Wavemeters ein zeitlich veränderlicher Offset addiert. Mit dieser Methode sind modensprungfreie Scans des Scheibenlasers von mehr als 2 GHz im Infraroten mit einer Scangeschwindigkeit von $\sim$3,6 MHz/s möglich. Nach der Frequenzvervierfachung entspricht das einer Scanweite von 8 GHz im Ultravioletten.
Der Spektroskopieteil des Aufbaus ist auf der rechten Seite von Abbildung 5.1 zu sehen. Es wurde eine 1 mm lange Quarzzelle, gefüllt mit Quecksilberdampf natürlichen Isotopengemischs, bei Raumtemperatur verwendet. Um den 6^1S – 6^3-Übergang nicht zu sättigen, wurde der UV-Strahl für die Spektroskopie auf $\sim$1 mW abgeschwächt. Mit der Photodiode PD-S wurde das Absorptionssignal gemessen. Dieses wurde dann mit Hilfe von Photodiode PD-N normiert, was Verzerrungen des Spektrums rückgängig macht, die aufgrund von Schwankungen und Drifts der UV-Leistung entstanden sind.

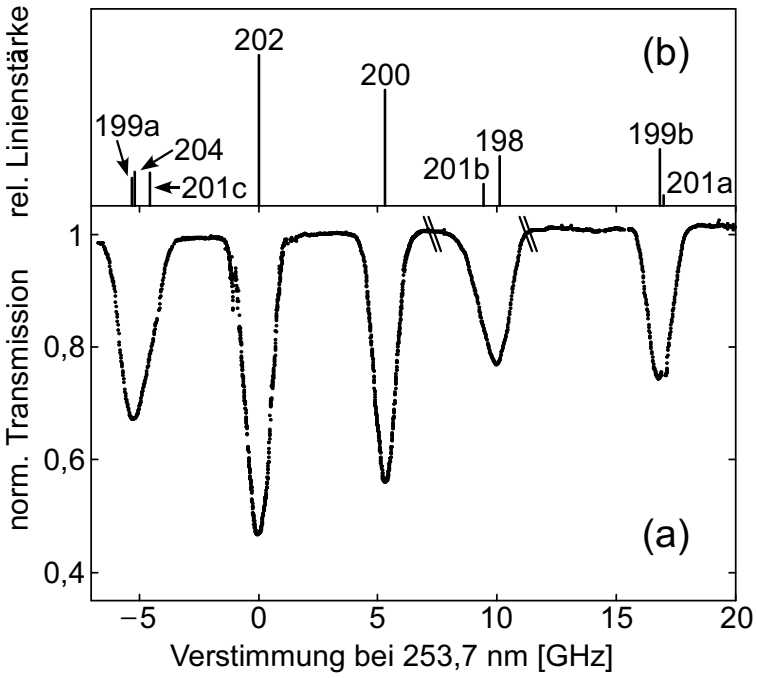

Abbildung 5.2: (a) Absorptionsspektrum des 6^1S – 6^3-Übergangs in atomarem Quecksilber. (b) Linienmitten der unterschiedlichen Quecksilberisotope. Buchstaben bezeichnen Hyperfeinkomponenten der ungeraden Isotope. a: $F = 1/2$**; b:** $F = 3/2$**; c:** $F = 5/2$**.**

Zusätzlich wurden durch Setzen eines Schwellwertes auf die von Photodiode PD-N gemessene Leistung Einbrüche im Signal beseitigt, die bei einer Unterbrechung der Stabilisierung der Frequenzverdoppelungsresonatoren entstanden sind. Abbildung 5.2(a) zeigt das so gemessene Absorptionsspektrum des 6^1S – 6^3P-Übergangs in Quecksilber. Dieses Spektrum wurde aus drei einzelnen Scans zusammengesetzt, deren Breite durch die beiden doppelten Schrägstriche angedeutet wird. Die Lücken, die bei Verstimmungen von -1 GHz und $+17$ GHz im Transmissionssignal zu sehen sind stammen von einem Softwareproblem des zur Wellenlängenbestimmung verwendeten Wavemeters, das mittlerweile durch Aufspielen einer neuen Firmware behoben ist. Zum Vergleich mit dem Transmissionsspektrum zeigt Abbildung 5.2(b) die relative Linienstärke der unterschiedlichen Quecksilberisotope und deren Hyperfeinkomponenten [Sch63] für ein natürliches Isotopengemisch [ZSB89]. Abbildung 5.2 demonstriert also, dass kontinuierliches Scannen mit diesem frequenzvervierfachten Yb:YAG Scheibenlaser möglich ist und, dass seine Frequenz auf alle Quecksilberisotope eingestellt werden kann. Für die Bandbreite des UV-Lichts Full-Width-at-Half-Maximum (FWMH), kann über den Zusammenhang [Ver95]

$$\text{FWMH} = \frac{\text{freier Spektralbereich}}{\text{Finesse}} = \frac{c/l}{F} \tag{5.1}$$

eine Obergrenze abgeschätzt werden. In [Sch06] wurde die *Finesse* des zweiten Resonators zu $F = 194$ bestimmt. Der freie Spektralbereich des Resonators kann über seine

bekannte optische Länge l zu 390 MHz berechnet werden. Damit ergibt sich eine Breite der Einkoppelpeaks des grünen Lichts in den zweiten Resonator von 2,0 MHz. Die Bandbreite des eingekoppelten grünen Lichts kann also maximal 2,0 MHz betragen. Als Obergrenze für das frequenzverdoppelte UV-Licht kann also 4,0 MHz angegeben werden.
Diese Bandbreite in Kombination mit denen der im Weiteren vorgestellten fundamentalen Laser ist ausreichend, weil ihre Summe deutlich unter der natürlichen Linienbreite des 1S – 2P-Übergangs in Wasserstoff von 100 MHz ist und so eine effiziente Kühlung auf diesem Übergang möglich ist. Der entsprechende Übergang in Antiwasserstoff hat vermutlich dieselbe Linienbreite, wodurch auch das Kühlen von Antiwasserstoff nicht durch die Bandbreite des erzeugten Lichts bei Lyman-α begrenzt sein wird.

5.2 Der Laser bei 407,9 nm

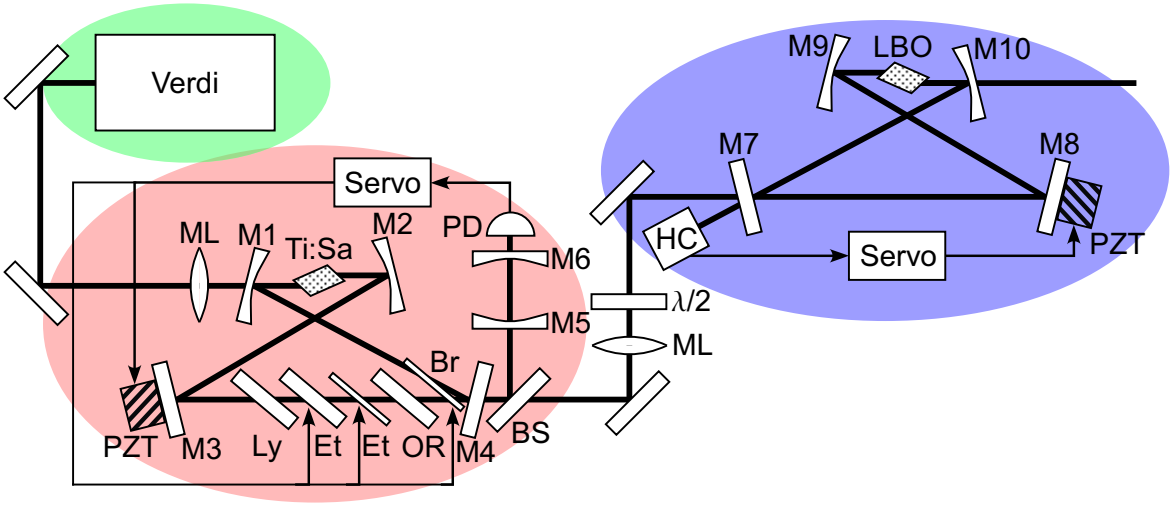

Abbildung 5.3: Aufbau des 408 nm-Lasers. *ML: Modematchinglinsen; M1-M10: Resonatorspiegel; Ti:Sa: Titan:Saphir-Kristall; PZT: Piezokeramiken; Ly: Lyot-Filter; Et: Etalons; OR: optische Diode; Br: Brewsterplättchen; BS: Strahlteiler; PD: Photodiode; $\lambda/2$: Wellenplatte; HC: Einheit zur Erzeugung und Detektion des Hänsch-Couillaud-Fehlersignals; LBO: Lithium Triborat-Kristall.*

Die Effizienz der Lyman-α-Erzeugung hängt stark davon ab, dass die Summe der Photonenenergien des ersten und zweiten fundamentalen Lasers zusammen genau der Energiedifferenz zwischen dem 7^1S_0- und dem 6^1S_0-Niveau im Quecksilber entspricht. Da die Photonen des ersten fundamentalen Lasers eine Energie entsprechend ihrer Wellenlänge von 253,7 nm haben, müssen die Photonen des zweiten fundamentalen Lasers also eine Wellenlänge von 407,9 nm aufweisen. Bei [EWH01] war dies ein frequenzverdoppelter Ar^+-Ionenlaser gepumpter Titan:Saphir-Laser (Coherent 899-21), der bis zu 2,05 W bei 798,2 nm und nach der Frequenzverdoppelung 920 mW bei 399,1 nm erzeugte. Die dort verwendete kürzere Wellenlänge erklärt sich aus der längeren Wellenlänge

des verwendeten frequenzverdoppelten Ar^+-Ionenlasers im Gegensatz zu dem hier verwendeten frequenzvervierfachten Yb:YAG-Scheibenlaser.
Für die hier behandelte Lyman-α-Quelle der zweiten Generation wird ein Verdi V10 gepumpter frequenzverdoppelter Titan:Saphir-Laser (Coherent 899-21) verwendet (Abbildung 5.3). Mit den 10,5 W Ausgangsleistung des Pumplasers werden maximal 1,35 W bei 815,8 nm erzeugt. Die geringere Ausgangsleistung gegenüber [EWH01] ist teilweise durch den geringeren Gain des Titan:Saphir-Kristalls bei der längeren Wellenlänge und die unterschiedliche Reflektivität der Resonatorspiegel zu erklären. Der Frequenzverdoppelungsresonator ist in Bow-Tie-Konfiguration aufgebaut und enthält einen brewstergeschnittenen Typ I winkelphasenangepassten LBO-Kristall (Crystals of Sibiria) als nichtlineares optisches Medium, welcher auf 45 °C geheizt wird um Kondensation von Wasserdampf auf seinen Oberflächen zu vermeiden. Auch dieser Resonator wird mit Hilfe des Hänsch-Couillaud-Locks stabilisiert. Der hier verwendete Überhöhungsresonator wurde auch schon in [EWH01] verwendet, allerdings aufgrund der anderen Wellenlänge mit einem anderen LBO-Kristall. Aus den 1,35 W infraroter Eingangsleistung werden maximal 400 mW blauer Leistung bei 407,9 nm erzeugt, was einer Konversionseffizienz von 30 % entspricht. Typischerweise werden im alltäglichen Betrieb ca. 200 mW blauer Leistung erzeugt.
Der Titan:Saphir-Laser wird über einen Referenzresonator frequenzstabilisiert und hat einen modensprungfreien Scanbereich von 30 GHz. Der Resonator kann dem Scan des Lasers um etwa 1,7 GHz folgen, bevor er neu stabilisiert werden muss. Dies entspricht einer kontinuierlichen Scanweite des blauen Lichts von 3,4 GHz. Die Linienbreite des Titan:Saphir-Lasers ist laut Hersteller <500 kHz. Eine obere Grenze für das frequenzverdoppelte Licht ist dann 1 MHz.

5.3 Der Laser bei 545,5 nm

Der verbleibende Energieunterschied vom 2-Photonen-Resonanzniveau 7^1S_0 zur benötigten Energie der Lyman-α-Photonen entspricht Lichtteilchen einer Wellenlänge von 545,5 nm. [EWH01] verwendeten zur Erzeugung dieser Strahlung einen Ar^+-Ionenlaser (Coherent Innova 100) gepumpten Farbstofflaser (Coherent 699-21) mit dem Farbstoff Rhodamin 110. So wurde eine typische Ausgangsleistung von 1,2 W bei 545,5 nm erzeugt. Dieser Laser wurde durch ein modernes leistungsstarkes frequenzverdoppeltes Faserlasersystem ersetzt (Abbildung 5.4) [MSKW07].
Der infrarote Laser besteht aus drei Komponenten. Die erste ist ein Ytterbium-dotierter Faseroszillator (Koheras Adjustic Model RTAdY10PztS), der eine maximale Ausgangsleistung von 127 mW generiert. Durch Änderung der Temperatur der lasenden Faser, ist das erzeugte Licht von 1090,81 nm bis 1091,19 nm durchstimmbar. Für schnelle Modulationen ist es um zusätzliche 8,4 GHz verstimmbar, indem eine elektrische Spannung an eine Piezokeramik angelegt wird, die die Faser dehnt. Die zweite Komponente, ein Ytterbium-dotierter Vorverstärker (Koheras Boostik Model BoY10Amp), kom-

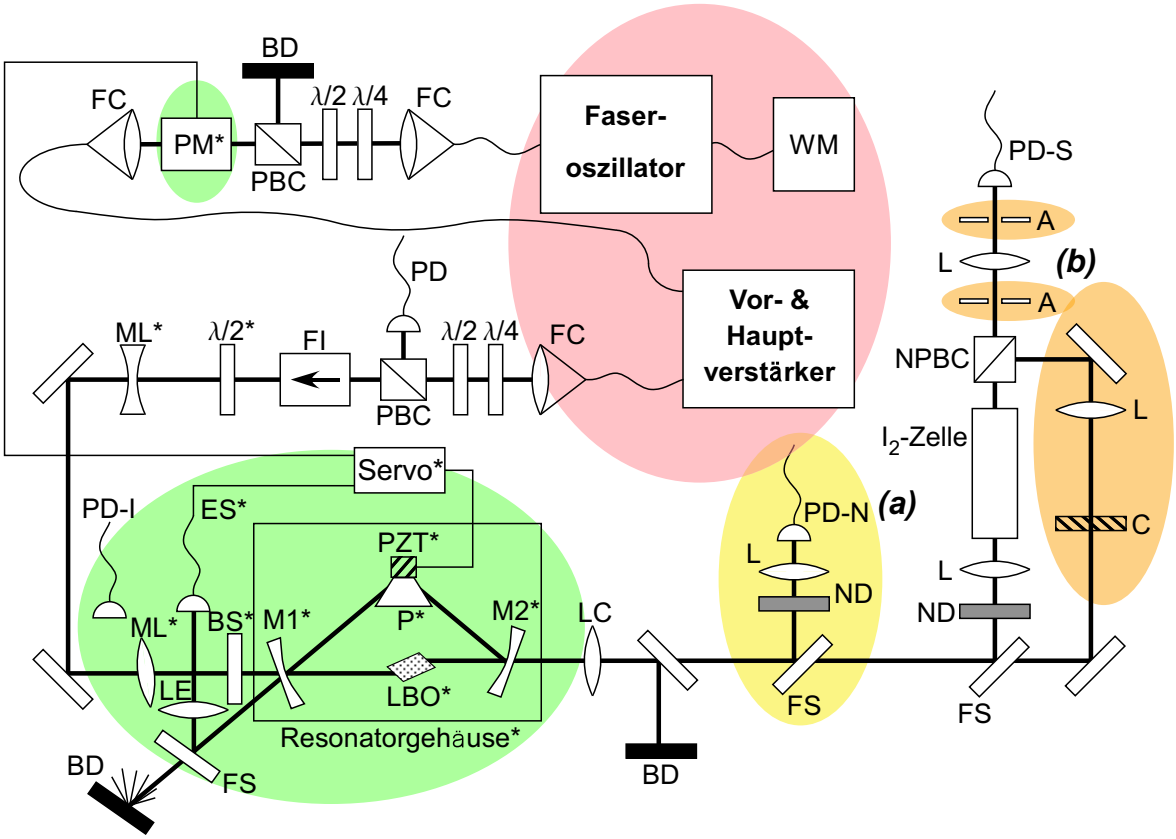

Abbildung 5.4: Aufbau des 546 nm-Lasers und der Spektroskopie an Jod. *WM: Wavemeter; FC: Faserkoppler; $\lambda/4$, $\lambda/2$: Wellenplatten; PBC, NPBC: polarisierende und nicht-polarisierende Strahlteilerwürfel; BD: Strahlblocker; PM: Phasenmodulator; PD, PD-I, PD-N, PD-S: Photodioden; FI: Faradayisolator; ML, LE, LC, L: Linsen; BS: Strahlverschieber; FS: Quarzfenster; L, CL: Linsen; ES: Einheit zur Detektion des Fehlersignals; M1, M2: Resonatorspiegel; LBO: Lithium Triborat-Kristall; P: Prisma; PZT: Piezokeramik; ND: Neutralgraufilter; C: Chopper; A: Apertur. Teil (a) wird zur Normierung des Absorptionsspektroskopiesignals genutzt; Teil (b) wird zur dopplerfreien Sättigungsspektroskopie benutzt.*

pensiert die Verluste, die nach dem Oszillator entstehen (Abbildung 5.4). Die dritte Komponente, ein Ytterbium-dotierter Hochleistungsverstärker (Koheras Boostik Model BoY10Amp), verstärkt Laserlicht bei einer minimalen Eingangsleistung von 90 mW auf eine maximale Ausgangsleistung von 9,3 W. Alle drei Faserlaserkomponenten benutzen single-mode-Fasern.

Die Frequenzverdoppelung ist ein modifizierter kommerzieller Aufbau (Spectra-Physics WaveTrain [ZMLG99]), deren Resonator mit einem Pound-Drever-Hall-Lock stabilisiert wird. Dieser Resonator beinhaltet einen brewstergeschnittenen LBO-Kristall, einen gekrümmten Einkoppelspiegel M1, einen gekrümmten Auskoppelspiegel M2 und ein Prisma aus Quarzglas, das auf einen Piezo angebracht ist. Der ganze Resonator befindet sich innerhalb eines Aluminiumgehäuses, das mit Fenstern für den eingehenden und den erzeugten Laserstrahl versehen ist. Dieses Gehäuse kann mit einem Deckel verschlossen werden und ist dann gegen Staub und Luftkonvektion abgedichtet. Zusätz-

lich dämpft das Gehäuse akustische Störungen und externe thermische Fluktuationen. Der LBO-Kristall ist Typ I winkelphasenfehlangepasst. Mit einem Peltierelement, das unterhalb des Kristalls angebracht ist, wird seine Temperatur konstant bei 35 °C gehalten was den temperaturabhängigen Phasenfehlanpassungswinkel stabilisiert und verhindert, dass Wasserdampf auf den Kristalloberflächen kondensiert. Das Prisma, welches ebenfalls im Brewsterwinkel geschnitten ist erfüllt zwei Aufgaben: zum einen lenkt es den vom Auskoppelspiegel reflektierten fundamentalen Strahl zurück auf den Einkoppelspiegel wodurch es den Ringresonator schließt und zum anderen scannt und stabilisiert es den Resonator. Das dreieckige Resonatordesign [ZMLG99] macht es, im Gegensatz zu der üblichen Bow-Tie-Geometrie für Frequenzverdoppelungsresonatoren möglich, einen relativ kleinen Resonator mit einer kurzen optischen Umlaufstrecke von < 20 cm zu konstruieren. Ein kurzer Resonator führt aus zwei Gründen zu zusätzlicher intrinsischer Lockstabilität. Erstens macht eine kurze optische Umlaufstrecke die Resonatorjustage weniger empfindlich auf Beampointing, das durch Störungen der optischen Elemente verursacht wird. Zweitens ist die Linienbreite des Resonators größer für einen kürzeren Resonator gleicher Finesse (Gleichung 5.1), was das Locken des Resonators auf die fundamentale Wellenlänge weniger empfindlich gegenüber Änderungen der effektiven Resonatorlänge, verursacht durch Vibrationen der Resonatorelemente, macht. Von einer maximalen Ausgangsleistung des Faserlasers von 9,3 W bleiben nach dem Faradayisolator noch 8,3 W übrig. Nimmt man diese 8,3 W als Eingangsleistung in den Resonator, werden 4,1 W bei 545,5 nm erzeugt, was einer Konversionseffizienz von 49 % entspricht. Abbildung 5.5 zeigt das Intensitätsprofil des frequenzverdoppelten Strahls, aus welchem sich seine Elliptizität zu 0,8 bestimmen lässt. Für den Transfer in unterschiedliche Experimentierzonen wird der Strahl zunächst von einer einzelnen Linse LC mit 155 mm Brennweite kollimiert. In den einzelnen Zonen wird er dann je nach Bedarf weiter geformt, um ihn zum Vier-Wellen-Mischen dieser Arbeit oder für zukünftiges Vier-Wellen-Mischen in einem Überhöhungsresonator aufzubereiten.

Der verwendete kommerzielle Frequenzverdoppelungsaufbau ist nicht für Ausgangsleistungen von mehreren Watt konstruiert worden. Darum und auch um optimale Konversionseffizienzen zu erreichen, wurde das kommerzielle System modifiziert. Komponenten, die Bestandteil des ursprünglichen WaveTrain-Aufbaus waren, sind in Abbildung 5.4 mit einem Stern markiert. Die infrarote Eingangsleistung in den Verdoppelungsresonator ist größer als die Zerstörschwelle des Phasenmodulators, der zur Erzeugung der Seitenbänder des Fehlersignals benutzt wird. Deshalb ist der Phasenmodulator zwischen dem Faseroszillator und den Hochleistungsfaserverstärkern eingebaut. Zur präzisen Justage der Modenanpassung ist die erste modematching-Linse M1 auf einem Linearverschiebetisch angebracht. Die zweite war bereits auf einem solchen Verschiebetisch montiert. Um den eingehenden Strahl auf die Elliptizität des im Resonator umlaufenden Strahls anzupassen, ist die zweite Linse zusätzlich etwas aus der senkrechten Position verkippt (7,5°). Die Einheit ES, die zur Detektion des Fehlersignals benutzt wird, würde von der hohen Eingangsleistung beschädigt werden. Deshalb wird

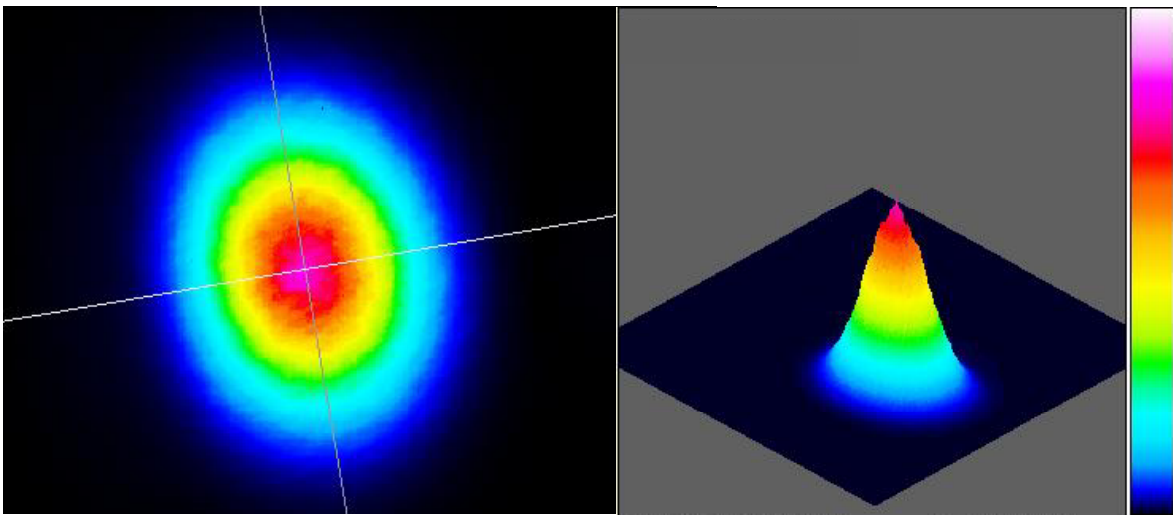

Abbildung 5.5: Intensitätsprofil des Lichts bei 546 nm, direkt nach der Frequenzverdoppelung. Das Profil wurde mit einer WinCamD von DataRay Inc. aufgenommen und mit der zugehörigen Software seine Elliptizität zu 0,8 **bestimmt.**

nur der Teil des vom Einkoppelspiegel reflektierten Strahls, der auch noch von einem zusätzlichen Quarzfenster reflektiert wird, zu dieser Einheit gesendet. Der durch das Quarzfenster hindurch transmittierte Anteil des Strahls wird von einem Strahlblocker aufgefangen. Ein kleiner Teil des von dem Strahlblocker ausgehenden Streulichts wird von einer zusätzlichen Photodiode PD-I detektiert, um die Einkoppeleffizienz in den Resonator zu überwachen. Zur optimalen Phasenanpassung und damit maximaler Ausgangsleistung des Resonators muss der Kristallwinkel φ passend auf die Eingangswellenlänge und die Kristalltemperatur eingestellt werden. Bei kleinen Eingangsleistungen kann das bewerkstelligt werden, indem der Einkoppelspiegel aus dem Resonator entfernt und der Kristallwinkel im Einfachdurchgang, ungestört von Leistungsänderungen des überhöhten fundamentalen Lichts, eingestellt wird. Nachdem dann der Einkoppelspiegel wieder eingesetzt wurde, sollten die Resonatorspiegel so justiert werden, dass die Resonatormode auf den eingehenden Strahl angepasst wird, um den Durchgang des Strahls durch den Kristall nicht mehr zu verändern. Für hohe Eingangsleistungen jedoch führt diese Methode nicht zu optimalen Resultaten sondern kann lediglich als Startpunkt für die Kristallwinkeljustage genutzt werden. Aufgrund von linearer Absorption im Kristall heizt sich die Oberseite des Kristallhalters von 31 °C auf 42 °C bei maximaler Eingangsleistung auf. Während die Kristalltemperatur ansteigt, fällt die harmonische Leistung von 4,3 W auf 1,3 W. Um die höhere Kristalltemperatur zu kompensieren, wird der Kristall zu kleineren Winkeln φ gedreht und so wieder optimale Phasenanpassung erreicht. Hilfreich bei der Anpassung von φ ist, dass der Resonator gelockt bleibt, während der Kristallwinkel gedreht wird, solange der Resonator nach jeder kleinen Drehung des Kristalls nachjustiert wird. Um Langzeitstabiliät der Ausgangsleistung bei hohen Eingangsleistungen zu erreichen, muss außerdem der Deckel des Aluminiumgehäuses entfernt werden damit die im Kristall erzeugte Wärme durch

Konvektion ausreichend abtransportiert werden kann. Abbildung 5.6 zeigt die grüne

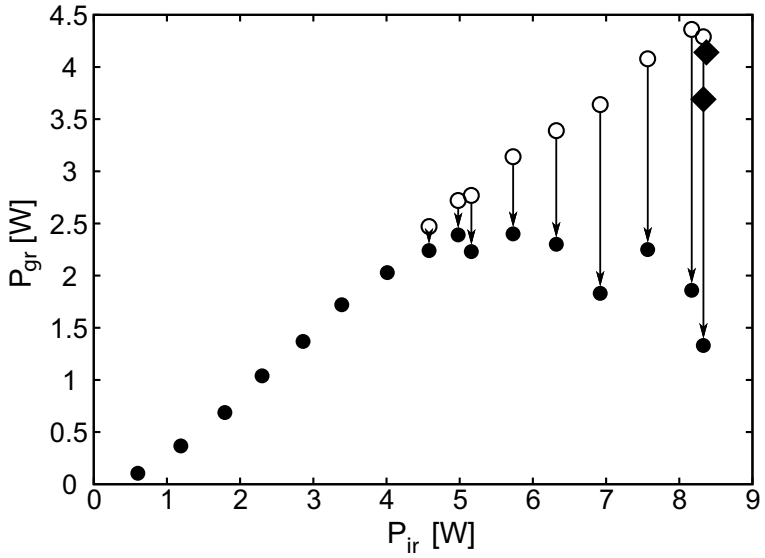

Abbildung 5.6: Grüne Ausgangsleistung P_{gr} bei 545,5 nm als Funktion der infraroten Eingangsleistung P_{ir} bei 1091,0 nm.

Ausgangsleistung als Funktion der infraroten Eingangsleistung. Messungen, bei denen der Kristallwinkel auf maximale Konversionseffizienz im Einfachdurchgang justiert war, sind als Kreise dargestellt. Ausgefüllte Kreise deuten stabile Ausgangsleistungen an. Leere Kreise zeigen die harmonische Leistung für eine bestimmte Eingangsleistung, direkt nachdem der Resonator gelockt wurde. Die Pfeile von den leeren zu den ausgefüllten Kreisen deuten dann die Relaxation zu stabilen Ausgangsleistungen an, welche sich innerhalb einiger Minuten gelockten Resonatorbetriebs einstellen. Die Rauten in Abbildung 5.6 stehen für die stabilen grünen Maximalleistungen bei voller infraroter Eingangsleistung, die mit der oben beschriebenen Justageprozedur erzielt wurden. Diese Maximalleistungen sind für mehr als 45 min stabil.

Die erzeugte Strahlung bei 545,5 nm wurde zur Spektroskopie an Jod verwendet, um sowohl das gute Scannverhalten als auch den longitudinalen Einzelmodenbetrieb zu demonstrieren. Der Spektroskopieteil des Aufbaus ist unten rechts in Abbildung 5.4 dargestellt. Für die Spektroskopie wurde eine 49 cm lange, Jod-gefüllte Zelle verwendet. Dabei entsprach der Dampfdruck des molekularen Jods einer Temperatur von $-4\,^{\circ}\mathrm{C}$. Das Absorptionssignal wurde mit Photodiode PD-S aufgenommen. Die Wellenlänge des fundamentalen Strahls wurde mit dem oben erwähnten kommerziellen Wavemeter (HighFinesse WS7) gemessen. Der obere Teil von Abbildung 5.7 zeigt einen Teil des Absorptionsspektrums des elektronischen $X^1\Sigma_g^+ - B^3\Pi_{0_u^+}$ Übergangs in molekularem gasförmigen Jod [GL78]. Hierbei wurde der Faserlaser über seinen gesamten Frequenzbereich durchgestimmt, was einer Temperaturänderung der lasenden Faser des Faseroszillators von 19,8 °C auf 50,5 °C entspricht. Das dopplerverbreiterte Absorptionssignal wurde dann mit dem von Photodiode PD-N gemessenen Signal normiert,

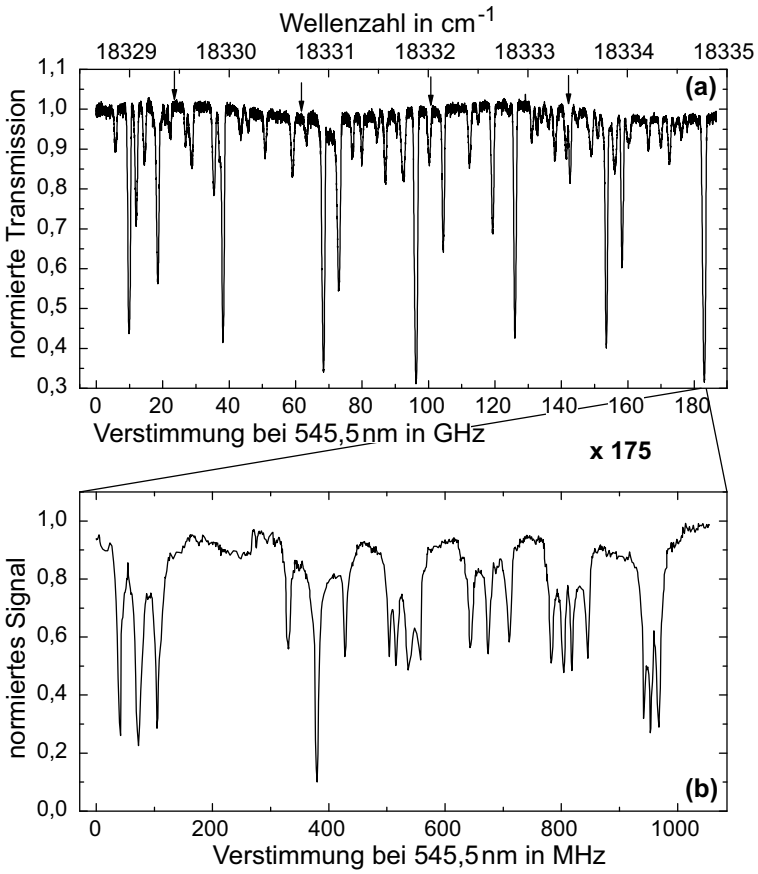

Abbildung 5.7: (a) Absorptionsspektrum von molekularem Jod. (b) Dopplerfreies Spektrum der Jod-Linie bei 18334,8 cm^{-1}.

was Verzerrungen des Spektrums aufgrund von Leistungsschwankungen und Drifts des grünen Lasers ausgleicht. Die verbleibende Modulation der Grundlinie wird auf Interferenzeffekte in den Fenstern der Jodzelle zurückgeführt. Über der Grundlinie sind vier kleine Pfeile eingezeichnet. Diese markieren die Stellen, an denen der Resonator seine maximale Verstimmbarkeit erreicht hatte und erneut gelockt werden musste.
Der untere Teil von Abbildung 5.7 zeigt eine dopplerfreie Sättigungsspektroskopie an der starken Jodlinie am rechten Ende des dopplerverbreiterten Absorptionsspektrums im oberen Teil der Abbildung 5.7. Diese Linie trägt die Nummer 4489 im Jodatlas [GL78]. Für diese Spektroskopie wurde die Wellenlänge des Faserlasers unter Ausnutzung seines weiter oben beschriebenen Piezos verstimmt. Das Wavemeter hat bei 1091 nm eine spezifizierte Genauigkeit von 27 MHz. Unterhalb dieser Grenze weißt die Wellenlängenmessung unphysikalische Stufen auf. Diese Stufen wurden für Abbildung 5.7 (b) über fünf Datenpunkte durch eine binomiale Gewichtung geglättet. Für die Sättigungsspektroskopie [SH71] wurde ein gechoppter Pumpstrahl in entgegengesetzter Richtung mit dem Signalstrahl überlagert und durch die leicht verkippte Jodzelle geschickt (Abbildung 5.4 (b)). Zwei Aperturen vor der Photodiode PD-S sorgten dafür, dass störendes Pumplicht blockiert wurde, welches von den Fenstern der Jodzelle reflektiert wurde. Das so gemessene Signal wurde mit einem Lock-In-Verstärker gleichgerich-

tet. Abbildung 5.7 zeigt, dass Scannen mit einem frequenzverdoppelten Hochleistungs-Ytterbiumfaserlaser möglich ist. Die Linienbreite der Laserstrahlung wurde auch hier nicht direkt vermessen. Der Hersteller spezifiziert die Linienbreite der Faserlaseremission zu 60 kHz. Die Linienbreite des grünen Lichts wird auf den doppelten Wert abgeschätzt.

5.4 Die Strahlüberlagerung

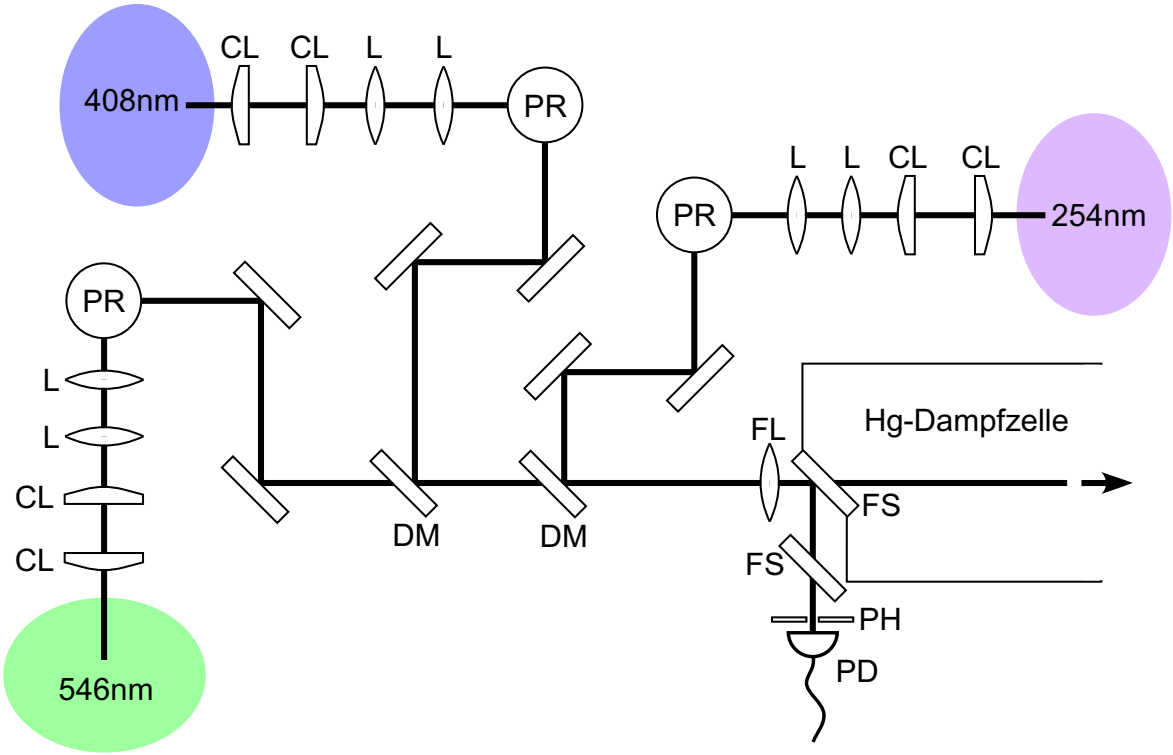

Abbildung 5.8: Strahlformung der drei fundamentalen Strahlen und anschließende Überlagerung zur Fokussierung in die Quecksilberdampfzelle. *CL: Zylinderlinsen; L: Linsen; FL: Fokussierlinse; PR: Polarisationsrotation; DM: Dichroitische Spiegel; FS: Quarzfenster; PH: Pinhole; PD: Photodiode.*

Bevor mit den oben beschriebenen Lasersystemen Lyman-α-Strahlung in der Quecksilberdampfzelle erzeugt werden kann, müssen die fundamentalen Strahlen noch entsprechend geformt und an zwei dichroitischen Spiegeln DM überlagert werden (Abbildung 5.8).
Zunächst ist es für eine effiziente Lyman-α-Erzeugung wichtig, dass die Foki der fundamentalen Strahlen möglichst klein sind (siehe Kapitel 7.5). Es kann allerdings nur von außerhalb mit einer Fokussierlinse in das Zentrum der beheizten Quecksilberdampfzelle fokussiert werden. Die hierfür verwendete Linse FL hat eine Brennweite von 15 cm. Damit möglichst kleine Foki der Strahlen in der Dampfzelle erzeugt werden, müssen die Strahlen beim Auftreffen auf die Linse FL möglichst groß sein. Zu diesem Zweck

wird zunächst der Astigmatismus jedes Strahls durch ein Zylinderlinsenpaar CL kompensiert. Dann wird mit einem weiteren Linsenpaar L die Divergenz und die Größe der Strahlen so aneinander angepasst, dass sich ihre Foki in Ausbreitungsrichtung an der gleichen Stelle in der Quecksilberdampfzelle befinden und dabei möglichst klein sind. Je nach Justage haben die Foki der drei fundamentalen Strahlen dann jeweils einen Konfokalparameter von etwa $b = 0{,}16\,\mathrm{cm}$. Dieser Wert wurde durch Ausmessen der Strahldurchmesser an den Foki der Strahlen, unter der Annahme gaußscher Strahlen, abgeleitet.
Um die Strahlen in der Quecksilberdampfzelle möglichst gut zu überlagern, werden diese zunächst durch den Aufbau auf den kleinen Spiegel justiert, der sie wieder aus der Vakuumapparatur heraus reflektiert (siehe Abbildung 5.9). Dadurch wird für ausreichende Parallelität der Strahlen gesorgt. Dann werden die Foki der Reflexe vom Eintrittsfenster der Quecksilberdampfzelle durch ein Pinhole mit $20\,\mu\mathrm{m}$ Durchmesser justiert. Die Dispersion im 3 mm dicken, unter einem Winkel von $45\,^\circ$ stehenden Eintrittsfenster sorgt dafür, dass die Foki des grünen und des ultravioletten transmittierten Strahls einen transversalen Abstand von etwa $50\,\mu\mathrm{m}$ haben, wenn die reflektierten Strahlen genau überlagert sind. Zudem wird beim Durchgang durch das Eintrittsfenster noch ein Astigmatismus in den fundamentalen Strahlen erzeugt. Um diesen Fehler bei der Formung und Überlagerung der Strahlen mit dem Pinhole zu kompensieren, wird noch ein 3 mm dickes Fenster unter $45\,^\circ$ in die reflektierten Strahlen gestellt. Simulationen mit Mathematica zeigen, dass die unterschiedlichen Positionen des Fensters in transmittierten und reflektierten Strahlen keinen signifikanten Unterschied in der Größe und Form des durch den Durchgang produzierten Astigmatismus ausmachen. Die Feinjustage der Überlagerung des ultravioletten und des blauen Strahls geschieht dann über eine Maximierung von infrarotem Fluoreszenzlicht bei 1014,3 nm. Dieses Licht wird von Quecksilberatomen ausgesandt, die über einen Zweiphotonenübergang in den 7^1S-Zustand gepumpt wurden und von dort in den 6^1P-Zustand zerfallen. Zuletzt kann der grüne Strahl über das erzeugte Licht bei Lyman-α feinjustiert werden.

5.5 Die Lyman-α-Erzeugung und Detektion

Die so überlagerten Strahlen werden in das Zentrum der Quecksilberdampfzelle fokussiert (Abbildung 5.9). Dabei passieren die fundamentalen Strahlen ein System von gekühlten Blenden. Diese dienen dazu den heißen Quecksilberdampf wieder zu kondensieren, der aus den Laserzugängen der Quecksilberdampfzelle austritt, bevor dieser das Eintrittsfenster zur Apparatur erreicht. Das Eintrittsfenster ist zwar beheizt, dennoch kann der Quecksilberdampf, wenn sein Partialdruck noch zu hoch ist, auf dem Fenster kondensieren und so die Transmission der fundamentalen Strahlen stören. Um die Diffusion des Quecksilberdampfes zum Fenster hin weiter zu erschweren wird die Apparatur nach dem Evakuieren mit 100 mbar Helium 5.0 geflutet. Zusätzlich verhindert das Helium die Bildung einer VUV-undurchlässigen Schicht auf den Optiken in

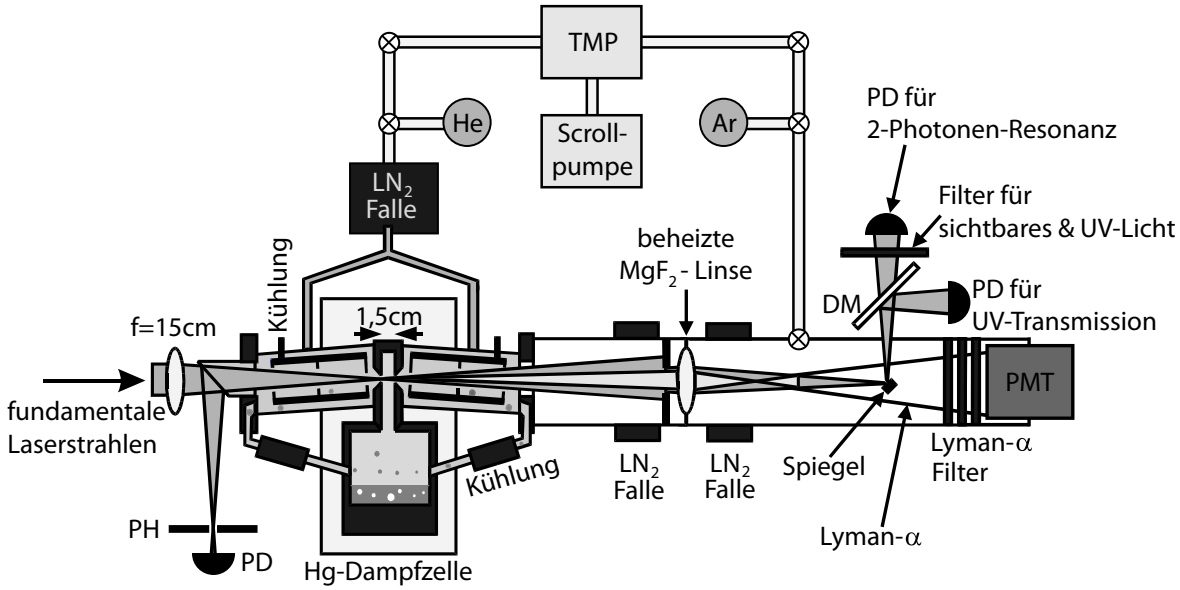

Abbildung 5.9: Erzeugung und Detektion der Lyman-α-Strahlung. *TMP: Turbomolekularpumpe; He: He-Gaszufuhr; Ar: Ar-Gaszufuhr; LN_2: flüssiger Stickstoff; PH: Pinhole; PD: Photodiode; DM: Dichroitischer Spiegel; PMT: Photomultiplier.*

der Quecksilberregion der Vakuumapparatur. Diese Schicht entsteht vermutlich durch eine vom UV-Licht induzierten Spaltung organischer Moleküle im Restgas, die dann auf die Optiken treffen und sich dort niederschlagen [EWH99, EWH01]. Das Heliumgas vermindert die Diffusion dieser Spaltprodukte.

Die 1,5 cm lange Quecksilberdampfzelle wird durch zwei voneinander unabhängige Heizkreisläufe auf die gewünschte Temperatur stabilisiert. Einer der Kreisläufe wird für den unteren Teil der Zelle mit dem flüssigen Quecksilber darin verwendet, der andere für den oberen Teil mit der Quecksilberdampfzone. Beide werden auf die selbe Temperatur eingestellt. Die Temperatur wird an zehn verschiedenen Stellen an der Zelle gemessen und ist gleichförmig über die Zelle, mit einer Abweichung von 10 °C. Bei korrekter Phasenanpassung findet in dieser Zelle die Lyman-α-Erzeugung statt. Es sollte dabei erwähnt werden, dass es für uns keine Möglichkeit gibt, die Temperatur oder den Druck des Dampfes an dieser Stelle direkt zu messen, lediglich die Temperatur der Dampfzelle selbst ist bekannt.

Im Anschluss an die beheizte Dampfzelle passieren die fundamentalen Strahlen und das erzeugte VUV-Licht wieder eine Reihe gekühlter Blenden, bevor sie nach einer weiteren Wegstrecke auf eine beheizte MgF_2-Linse treffen ($f_{\text{Linse, sichtbar}} = 21{,}5\,\text{cm}$, Strecke Foki bis MgF_2-Linse = 58,5 cm). Diese Linse erfüllt zwei Funktionen. Erstens trennt sie den mit Quecksilberdampf gefüllten Bereich der Apparatur vom quecksilberfreien Detektionsbereich und zweitens hilft sie bei der Trennung der fundamentalen Strahlen vom Lyman-α-Licht. Durch die stark unterschiedlichen Brechungsindizes von MgF_2 für die fundamentalen Strahlen und den erzeugten Strahl ($n_o(546\,\text{nm}) = 1{,}38$, $n_o(408\,\text{nm}) = 1{,}38$, $n_o(254\,\text{nm}) = 1{,}40$, $n_o(121\,\text{nm}) = 1{,}63$ [Pal91]) hat der Lyman-α-Strahl seinen Fokus bereits 17 cm nach der Linse, wohingegen die sichtbaren und der

nahe ultraviolette Strahl ihre Foki erst nach 34 cm ausbilden. 32 cm nach der Linse befindet sich ein dünner Metallstift ($\varnothing$ = 3 mm) im Strahlengang, der unter einem Winkel von 45 ° abgeschliffen und poliert ist und so die fundamentalen Strahlen aus der Apparatur heraus reflektiert. Der VUV-Strahl ist hier schon wieder deutlich aufgeweitet, wodurch der größte Teil am Spiegel vorbei transmittiert wird ($\sim$ 70 %). Nach dem Spiegel folgen drei Interferenzfilter (siehe Kapitel 4.4.1), die das restliche fundamentale Streulicht weiter unterdrücken, bevor das übrige Lyman-α-Licht vom im sichtbaren unempfindlichen Photomultiplier (Hamamatsu R6835) detektiert wird (näheres zur Detektion des VUV-Lichts in Kapitel 3). Trotz allem gibt es immer noch einen Untergrund auf dem Signal des Photomultipliers. Um diesen Untergrund zu beseitigen wird der vom Photomultiplier nicht mehr detektierte grüne Strahl mit einer Frequenz von einem Hertz gechoppt, jede Sekunde ein Datenpunkt aufgenommen und benachbarte Datenpunkte mit und ohne erzeugtem Lyman-α-Signal voneinander subtrahiert. Der Detektionsbereich wird mit 100 mbar Argon 5.0 gefüllt, um auch auf dieser Seite der MgF_2-Linse die Bildung einer VUV-undurchlässigen Schicht auf ihrer Oberfläche zu verhindern. Im Gegensatz zum Quecksilberbereich wird hier Argon verwendet, da Helium durch die Wände des Photomultipliers in sein Vakuum eindringen kann. Ist der Druck in seinem Inneren dadurch ausreichend angestiegen, kommt es zunächst zur Produktion von Nachpulsen und damit zu unerwünschtem Rauschen. Steigt der Druck weiter an, kann es durch die zwischen den Dynoden anliegende Hochspannung zu Gasentladungen kommen, die den Photomultiplier zerstören [BKV00, Ham06]. Als weitere Maßnahme, um zu verhindern, dass organische Moleküle und Quecksilber an die MgF_2-Linse gelangen, sind auf beiden Seiten der auf 65 °C geheizten Linse noch mit flüssigem Stickstoff gekühlte Kältefallen angebracht.
Das von dem Spiegel aus der Apparatur herausreflektierte UV-Licht wird zunächst vom restlichen Licht durch einen dichroitischen Spiegel DM getrennt und dann von einer Photodiode detektiert. Auch die in die Quecksilberzelle eingestrahlte UV-Leistung wird mit einer Photodiode überwacht. Damit kann die Absorption des UV-Lichts durch Anregung des $6^1S - 6^3P$-Übergangs im Quecksilberdampf in Abhängigkeit von der Temperatur der Dampfzelle und der Wellenlänge des UV-Lasers detektiert werden.
Ein kleiner Teil des in der Quecksilberdampfzelle beim Zerfall des 7^1S-Zustands in den 6^1P-Zustand in alle Raumrichtungen erzeugten infraroten Fluoreszenslichts wird ebenfalls von dem kleinen Spiegel aus der Apparatur herausreflektiert. Dieser Teil wird durch den dichroitischen Spiegel und einen Absorptionsfilter vom fundamentalen Licht getrennt und kann von einer Photodiode nachgewiesen werden. Um das schwache Signal des infraroten Lichts vom Untergrund zu trennen, wird das fundamentale UV-Licht gechoppt und das so periodische Signal durch die Lock-In-Technik verstärkt.

5.6 Einschränkungen beim fundamentalen Lasersystem

Bevor nun die ersten Messungen von Licht bei Lyman-α mit diesem Lasersystem vorgestellt werden, gilt es jedoch noch einige Bemerkungen hinsichtlich des fundamentalen Lasersystems zu machen.
Nach 2,5 Jahren zuverlässiger Funktion des Scheibenlasers machte sich ein Alterungsprozess der Yb:YAG-Scheibe bemerkbar, die zu einer auf 2,0 W verminderten Ausgangsleistung bei 1014,8 nm und einem verschlechtertem Strahlprofil führte. Daher stand bei 253,7 nm nur noch eine Leistung von 200 mW zur Verfügung. Nach den ersten Messungen war der Prozess dann soweit fortgeschritten, dass kein einfrequenter Betrieb bei 1014,8 nm mehr möglich war, was weitere Messungen zunächst verhindert hat. Dank einer kürzlich neu eingebauten Scheibe ist der Laser nun jedoch wieder voll funktionsfähig.
Beim Faserverstärker wurde mehrmals das Faserende seines Eingangs durch verstärkte Rückreflexe beschädigt, obwohl nach seinem Ausgang ein Faradayisolator verwendet wird. Deshalb war er mehrmals für bis zu 5 Monate zur Reparatur bei Koheras. Um den Verstärker vor einer nochmaligen Beschädigung zu bewahren, limitieren wir seine Ausgangsleistung auf 740 mW, wodurch uns nur 280 mW grünes Licht zur Verfügung stehen. Im Rahmen einer Diplomarbeit befindet sich momentan ein neuer Faserverstärker im Aufbau, dessen Faserenden bei Beschädigung dann ohne großen Aufwand von uns selbst neu poliert werden können.

Kapitel 6

Erste Messungen von Strahlung bei Lyman-α

In diesem Kapitel sollen nun die ersten Messungen, die mit diesem neuen Festkörperlasersystem unter Ausnutzung der Einphotonen-Resonanz gemacht wurden, vorgestellt und diskutiert werden. Dazu gehört die maximale bisher erzielte Leistung, ein Scan des zweiten fundamentalen Lasers über die Zwei-Photonen-Resonanzen der unterschiedlichen Quecksilberisotope und ein Scan der Quecksilbertemperatur über die Phasenanpassungskurve, der mit diesem neuen Lasersystem erstmalig möglich war.

6.1 Die maximale generierte Leistung bei Lyman-α

Wie im letzten Kapitel beschrieben wurde, standen uns fundamentale Laserleistungen von 200 mW bei 254 nm, 200 mW bei 408 nm und 280 mW bei 546 nm für die Lyman-α-Erzeugung zur Verfügung. Durch Verluste an den Optiken zwischen den fundamentalen Lasern und dem Inneren der Quecksilberdampfzelle wurden im Fokus der fundamentalen Strahlen noch 150 mW UV-Licht, 160 mW blaues Licht und 240 mW grünes Licht zur Lyman-α-Erzeugung genutzt. Mit diesen fundamentalen Leistungen erhielten wir bei einer Verstimmung des ersten fundamentalen Lasers von -400 GHz zur 6^1S – 6^3P-Resonanz des ^{202}Hg-Isotops eine maximale Zählrate von 2300 Lyman-α-Photonen pro Sekunde[1]. Nimmt man Abschwächungen des Lyman-α-Signals um den Faktor 0,68 durch die MgF_2-Linse, um 0,7 durch den Spiegel, um $1{,}0 \times 10^{-3}$ durch die Lyman-α-Filter und für den Photomultiplier eine Quanteneffizienz von 12 % (Herstellerangabe) bei 122 nm an, so lässt sich die Detektionseffizienz der erzeugten Lyman-α-Strahlung zu $6{,}0 \times 10^{-5}$ und damit die maximal erzeugte Lyman-α-Leistung zu 0,063 nW abschätzen. Eikema et al. erzeugten mit der alten Lyman-α-Quelle 20 nW [EWH01]. Das ist um einen Faktor 320 mehr, als die hier erzeugten 0,063 nW. Berücksichtigt man, dass uns ein Faktor 60 weniger an fundamentaler Laserleistung zur Verfügung stand, so wurde

[1] Diese Messung wurde ohne Choppen der UV-Strahlung zur Detektion der Zwei-Photonen-Resonanz durchgeführt.

in diesen ersten Messungen eine um den Faktor 5,3 geringere Konversionseffizienz erreicht, als bei [EWH01].
Mit der Theorie aus Kapitel 7 kann berechnet werden, dass uns, trotz der beginnenden Absorption des ersten fundamentalen Laserstrahls, eine um den Faktor 5 höhere Konversionseffizienz als mit der alten Quelle möglich sein sollte. Diese Erhöhung wird durch die nähere Verstimmung von $-400\,\mathrm{GHz}$ zur Ein-Photonen-Resonanz im Gegensatz zu den $-16\,\mathrm{THz}$ der alten Quelle ermöglicht. Die erzeugte Leistung bei Lyman-α wird von der Theorie aus Kapitel 7 für die hier beschriebenen experimentellen Parameter zu 0,63 nW und für die experimentellen Parameter aus [EWH01] zu 7,5 nW vorhergesagt. Durch optimierte Justage und Strahlformung der fundamentalen Strahlen, Erhöhung der fundamentalen Leistungen (Kapitel 5.6), und nicht zuletzt durch den positiven Einfluss der Ein-Photonen-Resonanz, sind in Zukunft also noch wesentlich höhere Leistungen zu erwarten.

6.2 Scan des blauen Lasers über die 6^1S – 7^1S-Resonanz

Abbildung 6.1 zeigt einen Scan des Lasers bei 408 nm über die Zwei-Photonen-Resonanzen der unterschiedlichen Quecksilberisotope. Dabei wurden gleichzeitig das erzeugte Lyman-α-Licht und die Fluoreszenz des 7^1S-Zustandes detektiert. Die Verstimmung des Lasers bei 254 nm zur 6^1S – 6^3P-Resonanz des ^{202}Hg-Isotops beträgt hier $-974\,\mathrm{GHz}$. Die gemessene Temperatur der Quecksilberdampfzelle ist 225 °C. Die relativen Linienstärken und die Linienmitten der unterschiedlichen Quecksilberisotope sind in Abbildung 6.1 durch senkrechte Striche dargestellt. Die gestrichelten Linien sind theoretische Berechnungen des Lyman-α-Signals und der Zwei-Photonen-Resonanz, die an die Daten angefittet wurden.
Nach Kapitel 2.5.2 ist die erzeugte Leistung bei Lyman-α für diesen Scan proportional zur Funktion $|S(\omega_1+\omega_2)|^2$ und es genügt für eine qualitative Beschreibung der Messung nur diese Funktion zu berücksichtigen. Die Höhe dieser Funktion wird den Daten angepasst und v_w als die wahrscheinlichste Geschwindigkeit bei $T = 225\,°\mathrm{C}$ genommen. Für eine Druckverbreiterung von 1,25 GHz erhält man so die gestrichelte Kurve im oberen Teil von Abbildung 6.1, die damit auch von der Breite an die gemessenen Daten angepasst ist.
Das infrarote Fluoreszenzsignal aus dem unteren Teil von Abbildung 6.1 ist ein Maß für die Besetzungswahrscheinlichkeit des 7^1S-Niveaus. Diese kann mit Hilfe der optischen Blochgleichungen berechnet werden [Bey08, BH75]. Hierzu werden zunächst die optischen Blochgleichungen für ein 3-Niveau-System aus der von-Neumann-Gleichung unter phänomenologischer Einführung von Dämpfungstermen berechnet. Diese Dämpfungsterme führen dann zum homogenen Anteil der Linienverbreiterung. Im thermischen Gleichgewicht ist nur der Grundzustand besetzt (siehe Kapitel 2.5) und für den sta-

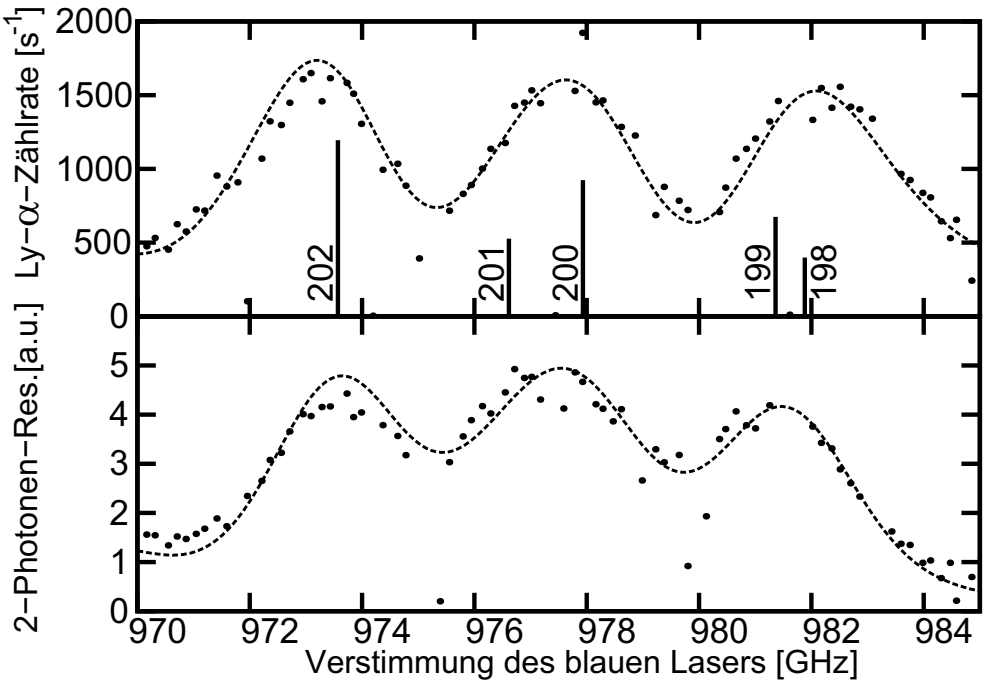

Abbildung 6.1: Lyman-α-Signal und Fluoreszenz bei 1014 nm als Funktion der Verstimmung des blauen Lasers bei 408 nm. Theoretische Fits an die Datenpunkte sind durch gestrichelte Linien dargestellt. Relative Linienstärken und Linienmitten der unterschiedlichen Quecksilberisotope werden durch senkrechte Striche angezeigt.

tionären Zustand, der mit einem kontinuierlichem Lasersystem erzeugt wird, sind die zeitlichen Ableitungen der Elemente der Dichtematrix gleich Null. Unter diesen Voraussetzungen werden die Blochgleichungen dann nach der Besetzung des 7^1S-Niveaus gelöst. Um auch hier die Geschwindigkeitsverteilung der Atome zu berücksichtigen wird die Lösung der Blochgleichungen mit einer Gauß-Verteilung gewichtet und dann über alle Geschwindigkeiten integriert[2]. Diese Rechnung ist für alle Isotope und Hyperfeinkomponenten der Ein-Photonen-Übergänge einzeln durchzuführen, worauf dann die einzelnen Ergebnisse mit der entsprechenden Gewichtung G zu einem Gesamtergebnis aufaddiert werden.

Auch bei dieser Rechnung wurde für die Gauß-Verteilung die Temperatur des Gases zu $T = 225\,^{\circ}\mathrm{C}$ angenommen und die Höhe der berechneten Kurve den Datenpunkten angeglichen. Dann wurde wieder die Breite der Kurve durch Wählen einer geeigneten Druckverbreiterung ν_C von 2,5 GHz an die Breite der gemessenen Kurve angepasst. Die Ursache des Unterschieds in den Druckverbreiterungen der beiden Messkurven ist unklar und benötigt weitere Untersuchungen. Eine denkbare Erklärung wäre, dass sich die Foki der fundamentalen Strahlen vor dem Maximum der Dichteverteilung in der Dampfzelle befunden haben. Die Lyman-α-Erzeugung findet hauptsächlich im Bereich der Foki statt, wohingegen die Zwei-Photonen-Resonanz über die gesamte Länge des

[2]Dies geschieht auf die gleiche Weise, wie in Kapitel 2.4 für die Berechnung von $\chi^{(1)}$ vorgestellt.

Quecksilberbereichs angeregt wird. Dadurch könnte die Zwei-Photonen-Resonanz dann mehr Gewichtung auf die höhere Dichte in der Mitte der Zelle haben.
Ein Vergleich der Lyman-α-Erzeugung mit der Zwei-Photonen-Resonanz zeigt die Wichtigkeit der Zwei-Photonen-Resonanzbedingung für eine effiziente Lyman-α-Erzeugung. Ein subtiler Unterschied zwischen den beiden Signalen ist, dass die Maxima der Lyman-α-Erzeugung, die zu den ^{202}Hg beziehungsweise ^{199}Hg und ^{198}Hg Isotopen gehören, verglichen mit denen der Zwei-Photonen-Resonanz verschoben sind. Hierbei sind die Maxima der Zwei-Photonen-Resonanz dort, wo man es aufgrund der Position der Isotope erwarten würde. Dieser Unterschied zwischen den beiden Kurven tritt sowohl in den experimentellen Daten, als auch in der theoretischen Berechnung auf. Die Erklärung für diese Verschiebung ist, dass die Lyman-α-Wellen, die von unterschiedlichen Isotopen produziert werden, miteinander interferieren können, während die Isotope unabhängig voneinander zu der Fluoreszenz beitragen, die von der Zwei-Photonen-Resonanz stammt. Mathematisch bedeutet dies im Falle der Lyman-α-Erzeugung, dass die komplexe Funktion $S(\omega_1 + \omega_2)$ zunächst für jedes Isotop addiert wird und dann das Betragsquadrat der Summation gebildet wird. Strahlt man eine Frequenz des blauen Lasers ein, mit der man sich zwischen den verschiedenen Isotopen befindet, dann sind die $S(\omega_1 + \omega_2)$-Funktionen der unterschiedlichen Isotope dephasiert, woraus ein geringerer Betrag der Summe und damit eine geringere Leistung bei Lyman-α resultiert. Außerhalb dieser Region sind die $S(\omega_1 + \omega_2)$-Funktionen wieder alle in Phase und ihre Beiträge addieren sich konstruktiv. Diese positionsabhängige Phase schiebt die Maxima der Lyman-α-Erzeugung auseinander.
$S(\omega_1 + \omega_2)$, oder richtiger wäre eigentlich $|S(\omega_1 + \omega_2)|^2$, wird in der Literatur oft als Form der Zwei-Photonen-Resonanz bezeichnet [SA87]. Der obige Vergleich macht jedoch deutlich, dass die Funktion $|S(\omega_1 + \omega_2)|^2$ zwar die Form des beim Vier-Wellen-Mischen erzeugten Signals beschreiben konnte, aber für den Fall eines Isotopengemischs eben nicht die Form der Zwei-Photonen-Resonanz.

6.3 Lyman-α-Erzeugung in Abhängigkeit von der Temperatur der Hg-Zelle

Abbildung 6.2 zeigt eine Messung des Lyman-α-Signal als Funktion der Temperatur der Quecksilberdampfzelle. Anhand dieser Messung soll die Abhängigkeit des Vier-Wellen-Misch-Prozesses von der Phasenanpassung untersucht werden. Die Verstimmung des UV-Lasers zur $6^1\mathrm{S}$ – $6^3\mathrm{P}_1$-Resonanz des ^{202}Hg-Isotops beträgt hier wieder $-400\,\mathrm{GHz}$. Die Frequenz des blauen Lasers ist auf das wellenlängenabhängige Maximum der Lyman-α-Erzeugung eingestellt. Das Maximum der Lyman-α-Erzeugung in Abhängigkeit von der Temperatur liegt bei etwa 195 °C.
Verglichen mit [EWH01] macht es damit der frequenzvervierfachte Scheibenlaser mit seinen kleinen Verstimmungen zum 6^3P-Niveau zum ersten Mal möglich über die Pha-

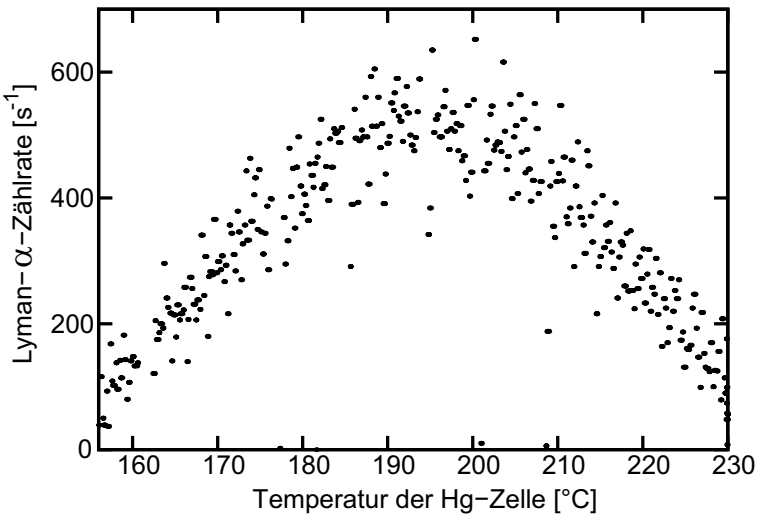

Abbildung 6.2: Lyman-α-Zählrate in Abhängigkeit von der Temperatur der Quecksilberdampfzelle.

senanpassungskurve dieses Vier-Wellen-Misch-Prozesses zu scannen, ohne die maximale Temperatur der Quecksilberdampfzelle zu übersteigen. Der frequenzverdoppelte Ar^+-Ionenlaser aus [EWH01] bei 257 nm war 16 THz von der 6^1S – 6^3P-Resonanz entfernt wodurch die gewünschte Phasenfehlanpassung bei einer Temperatur des Quecksilberdampfes von 220 °C erreicht wird (Kapitel 7). Wurde die Quecksilberdampfzelle auf Temperaturen oberhalb 220 °C geheizt, begann Quecksilber das Eintrittsfenster der Zelle zu beschlagen.

Die Berechnung der erzeugten Leistung bei Lyman-α in Abhängigkeit von der Temperatur des Quecksilberdampfes nach Kapitel 7 ergibt eine Kurve, deren Maximum um etwa 40 °C zu tieferen Temperaturen verschoben ist und die um etwa 20 °C schmäler ist, als die hier gemessene Kurve in Abhängigkeit der Temperatur der Quecksilberdampfzelle.
In der Vergangenheit haben auch Smith und Alford [SA86] in ihrem Experiment eine Differenz zwischen der Temperatur ihrer Zelle und der Temperatur des Quecksilberdampfes festgestellt. Sie verwendeten eine sogenannte Heat-Pipe, in der über den Druck eines Puffergases, über einen weiten Bereich unabhängig von der Heizleistung, an der Zelle Druck und Temperatur des Quecksilberdampfes eingestellt werden können. Sie messen die Temperatur ihrer Zelle zu 240 °C und geben gleichzeitig die Temperatur des Quecksilberdampfes als 150 °C an. Die Temperatur des Quecksilbers bestimmen sie über den Dampfdruck des Puffergases und auch über die Temperatur ihres Heat-Pipe-Rohrs, über das der Quecksilberdampf seine Energie wieder abgibt. Zusätzlich verifizieren die gemessenen Werte über Messungen der Rayleighstreuung [AABC84]. Den Unterschied zwischen der Temperatur der Zelle und der des Dampfes erklären Smith und Alford mit einer schlechten Benetzung des Edelstahls durch Quecksilber

und seine relativ geringe Wärmeleitfähigkeit.
Auch in dieser Gruppe wurde kürzlich eine Heat-Pipe zum Vier-Wellen-Mischen in Quecksilberdampf aufgebaut [Nei09] und auch in diesem Aufbau wurde wieder ein Unterschied zwischen der Temperatur der Zelle und der des Quecksilberdampfes festgestellt, der hier aber weniger groß ausfällt als bei [SA86]. Bei einer Dampftemperatur von 150 °C, die über den Puffergasdruck und die Temperatur des Heat-Pipe-Rohres bestimmt wird, beträgt die Temperatur an der Zelle etwa 170 °C.
Es gibt also auch bei zwei anderen Aufbauten von Quecksilberdampfzellen einen Unterschied zwischen der Temperatur des Quecksilberdampfes und der Temperatur die an der Zelle gemessen wird. Dieser hat in den verschiedenen Experimenten immer einen anderen Wert. Da die Temperatur bei den beiden zuletzt beschriebenen Experimenten nicht durchgefahren wird, und die Apparaturen so einen stationären Zustand erreichen, ist die Temperaturdifferenz eine vom Aufbau der Dampfzelle abhängige Größe.
Allen drei Experimenten ist gemein, dass sie die Möglichkeit von Wärmeabtransport aus dem Quecksilberdampf heraus bieten. Bei den Heat-Pipe-Experimenten geschieht dies, indem der Quecksilberdampf das Heat-Pipe-Rohr aufheizt, welches die Wärme dann wiederum an die Umgebung abgibt. In der hier verwendeten Apparatur kann der Quecksilberdampf durch die Aperturen der Zelle und durch ihre Rückflussrohre entweichen und gibt dann die Wärme an die gekühlten Blenden und Rohre ab. Nur über diese Möglichkeit der Wärmeabfuhr ist es überhaupt möglich, dass sich in einem stationären Zustand eine Temperaturdifferenz zwischen der beheizten Zelle und dem Quecksilberdampf einstellt. Je höher die Temperatur der Zelle ist, desto größer kann der Unterschied dann ausfallen. Dies ist eine Erklärung für die Verbreiterung der hier gemessenen Lyman-α-Kurve gegenüber der gerechneten Kurve. Hinzu kommt, dass in diesem Experiment die Zelle innerhalb von 15 Minuten von 155 °C auf 230 °C aufgeheizt wurde. Aufgrund des schlechten Übertrags der Wärme vom Edelstahl auf Quecksilber kann es sein, dass sich so das Aufheizen des Quecksilbers zusätzlich noch verzögert hat. Dadurch kann die Abweichung bei hohen Temperaturen noch größer als in einem stationärem Zustand ausgefallen sein, was dann noch zusätzlich für eine Verbreiterung der Messkurve sorgt. Ob es eine solche zusätzliche Verbreiterung gibt und wie groß dieser Effekt ist, kann herausgefunden werden, indem die Temperatur langsamer durchgefahren wird, oder indem eine Messung mit ansteigender Temperatur mit einer Messung mit abfallender Temperatur verglichen wird.

Kapitel 7

Berechnung der erzeugten Leistung bei Lyman-α

Mit der neuen Lyman-α-Quelle, die in dieser Arbeit vorgestellt wurde, war es erstmals möglich über die Phasenanpassungskurve des verwendeten Vier-Wellen-Misch-Prozesses zu scannen (Kapitel 6.3). Aufbauend auf den Theoriekapiteln vom Anfang dieser Arbeit soll nun in diesem Kapitel die erzeugte Leistung bei Lyman-α in Abhängigkeit von der Temperatur des Quecksilberdampfes auch theoretisch berechnet werden. Hierfür wird zunächst einzeln auf die Phasenfehlanpassung Δk, die nichtlineare Suszeptibilität pro Atomdichte $\chi_a^{(3)}$ und die Phasenanpassungsfunktion $G^{(3)}$ eingegangen. Dann wird die theoretische Phasenanpassungskurve mit den experimentellen Daten verglichen.
Die hier vorgestellte Rechnung erlaubt zudem eine sehr vielseitige Betrachtung unterschiedlicher Einflüsse auf die erzeugte Leistung bei Lyman-α und die Form und Lage der Phasenanpassungskurve. Im Anschluss soll deshalb insbesondere noch im Detail auf die Auswirkungen von verschiedenen Strahlparametern, von unterschiedlichen Dichteprofilen des Quecksilberdampfes, von der Absorption des UV-Laserstrahls und auf die Auswirkungen vom hier als Puffergas verwendeten Heliums eingegangen werden.
Der Quellcode des Mathematica-Programmes, mit dem die Berechnungen und Simulationen dieses Kapitels durchgeführt wurden, ist in Anhang D zu finden.

7.1 Die Phasenfehlanpassung Δk

Für die theoretische Beschreibung der Lyman-α-Erzeugung soll hier als erstes die Phasenanpassung in Abhängigkeit von der Temperatur berechnet werden. In Kapitel 2.4 wurde erklärt, dass es sich zu diesem Zweck anbietet zunächst einen Wert $C_{\mathrm{Hg}} = \Delta k_{\mathrm{Hg}}/N_{\mathrm{Hg}}$ zu berechnen, der unabhängig von der Dichte der Quecksilberatome ist, die sich mit dem Ort und der Temperatur ändert.
Zwar ändert sich mit der Temperatur auch die Dopplerverbreiterung und die Druckverbreiterung aller Übergänge, die bei der Rechnung berücksichtigt werden müssen, doch

hat dies keinen signifikanten Einfluss auf den Wert C_{Hg}, wie im Folgenden erläutert wird. Es sollte hier noch erwähnt werden, dass dies nicht für den Absorptionskoeffizienten gilt, der neben einer Spektrallinie ja erst durch die verschiedenen Verbreiterungsmechanismen dieser Linie zustande kommt (Vergleiche hierzu Gleichungen 2.3, 2.4, 2.50 und 2.55). Die geringste Verstimmung der Laser zu den Übergängen ist in dieser Arbeit die $-400\,\mathrm{GHz}$ Verstimmung des UV-Lasers zur $6^1\mathrm{S}$ – $6^3\mathrm{P}$-Resonanz des ^{202}Hg-Isotops. Nimmt man eine Verstimmung von $-45\,\mathrm{GHz}$ zu diesem Isotop an, für die der Einfluss der Linienverbreiterung größer als bei $-400\,\mathrm{GHz}$ ist, so kann die Linienform noch durch ein Voigtprofil beschrieben werden [PLL75] und die Berücksichtigung der Verbreiterungsmechanismen nach Kapitel 2.4 hat Gültigkeit.
Für eine Quecksilbertemperatur von $T = 230\,^{\circ}\mathrm{C}$, was die maximale, in dieser Arbeit eingestellte Temperatur der Dampfzelle ist, beträgt die Druckverbreiterung des $6^1\mathrm{S}$ – $6^3\mathrm{P}$-Übergangs $\Delta\nu_C = 0{,}89\,\mathrm{GHz}$ und seine Dopplerverbreiterung $\Delta\nu_D = 1{,}34\,\mathrm{GHz}$ (siehe Anhang C.4). Vergleicht man bei einer Verstimmung von $-45\,\mathrm{GHz}$ den Wert von C_{Hg} für diese Linienverbreiterungen mit dem Wert komplett ohne Verbreiterungsmechanismen, so weichen beide nur um 0,0056 % voneinander ab.
Für eine Abweichung von einem Prozent würde eine Druckverbreiterung von $\Delta\nu_C = 10\,\mathrm{GHz}$ benötigt, was einem Druck des Quecksilbers von 780 mbar entspricht. Es ist deshalb, und aufgrund der wesentlich geringeren Masse von Helium [Dem07], auch nicht davon auszugehen, dass ein Partialdruck des Heliums von 100 mbar die Druckverbreiterung derart erhöht.
Damit lässt sich also sagen, dass der Wert $C_{\mathrm{Hg}} = -2{,}78 \times 10^{-16}\,\mathrm{cm}^2$ bei einer Verstimmung von mehr als $-45\,\mathrm{GHz}$ nahezu unabhängig von Linienverbreiterungen, insbesondere der Druckverbreiterung und damit praktisch unabhängig von N_{Hg} ist.
Zur Berechnung der Phasenanpassung für eine reine Quecksilberatmosphäre in Abhängigkeit von der Temperatur $\Delta k_{\mathrm{Hg}}(T)$, wird nun noch die Dichte der Quecksilberatome in Abhängigkeit von der Temperatur $N_{\mathrm{Hg}}(T)$ mit den Werten aus Anhang C.3 bestimmt, und C_{Hg} mit $N_{\mathrm{Hg}}(T)$ multipliziert.
Um den Einfluss des als Puffergas verwendeten Heliums auf die erzeugte Leistung bei Lyman-α berücksichtigen zu können, muss auch der Anteil Δk_{He} von Helium an der Phasenfehlanpassung berechnet werden. Auch für Helium wird zunächst die Phasenfehlanpassung pro Atomdichte C_{He} bestimmt und dann mit der Dichte der Heliumatome N_{He} multipliziert, die über die gesamte Zelle als konstant angenommen wird (Anhang A). [MS03] geben eine Tabelle der Dipolpolarisierbarkeit von Helium in Abhängigkeit von der Frequenz, aus der sich nach [SA86] der Wert der Phasenfehlanpassung pro Atomdichte von Helium zu $C_{\mathrm{He}} = 1{,}13 \times 10^{-19}\,\mathrm{cm}^2$ bestimmen lässt (siehe Anhang D).
Nach der Bestimmung der einzelnen Beiträge der beiden Gassorten, werden diese Beiträge jetzt, wie in Kapitel 2.4 beschrieben, zur gesamten Phasenfehlanpassung aufaddiert. Es ist also $\Delta k = C_{\mathrm{Hg}} \times N_{\mathrm{Hg}} + C_{\mathrm{He}} \times N_{\mathrm{He}}$.

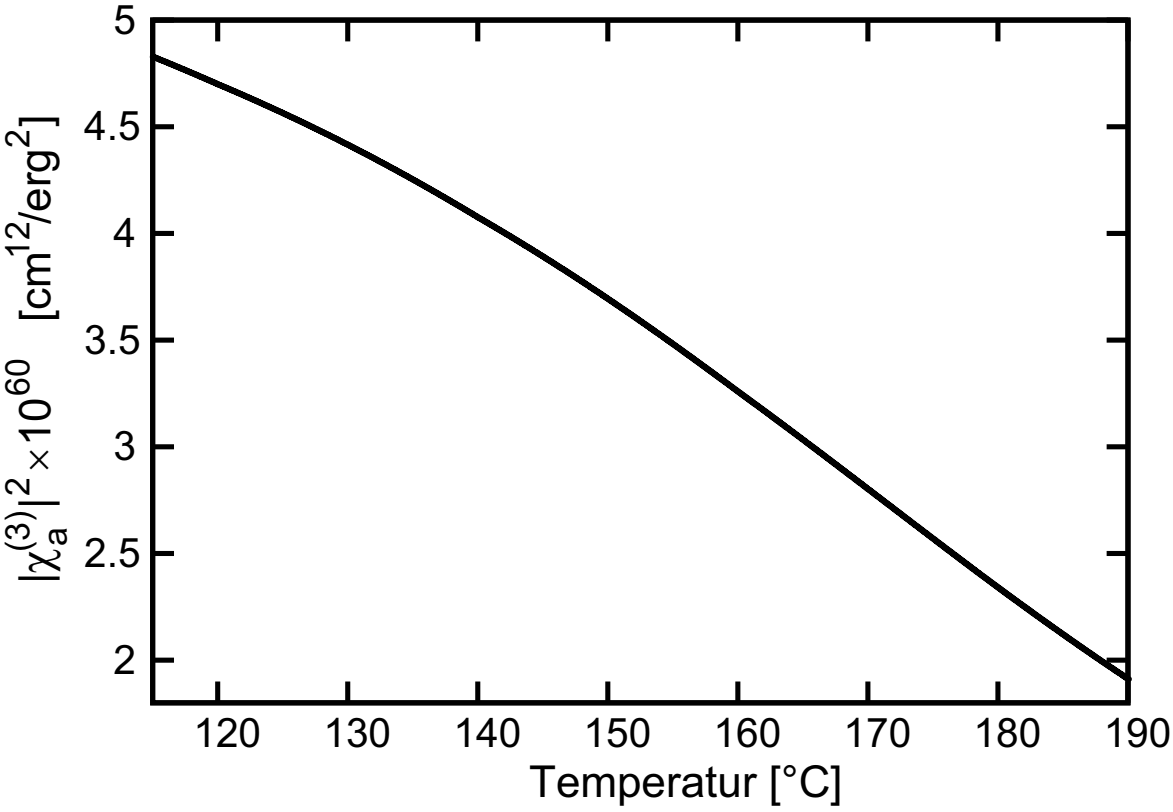

Abbildung 7.1: $\left|\chi_a^{(3)}\right|^2$ in Abhängigkeit von der Temperatur des Quecksilberdampfes. Die Verstimmung des UV-Lasers zur $6^1\mathbf{S} - 6^3\mathbf{P}$-Resonanz des ^{202}Hg-Isotops beträgt hier $-400\,\mathbf{GHz}$.

7.2 Die nichtlineare Suszeptibilität pro Atomdichte $\chi_a^{(3)}$

Die Berechnung von $\chi_a^{(3)}$ nach dem entsprechenden Theoriekapitel 2.5 kann mit den Werten aus Anhang C direkt durchgeführt werden. Einzige Unbekannte dabei ist die Abhängigkeit der Druckverbreiterung der Funktion $|S(\omega_1 + \omega_2)|^2$ von der Temperatur. Aus dem Scan über die Zwei-Photonen-Resonanz wurde die Druckverbreiterung bei einer Temperatur der Dampfzelle von $T = 225\,°\mathrm{C}$ zu $\Delta\nu_C = 1{,}25\,\mathrm{GHz}$ bestimmt (Kapitel 6.2). Diese Temperatur der Dampfzelle entspricht, wie sich im Laufe dieser Auswertung herausstellen wird, vermutlich einer Quecksilbertemperatur von $T = 185\,°\mathrm{C}$. Für die Bestimmung der Druckverbreiterung aus dem Fit an die Daten macht es jedoch keinen signifikanten Unterschied, ob zur Berechnung der Dopplerverbreiterung $T = 225\,°\mathrm{C}$ oder $T = 185\,°\mathrm{C}$ angenommen wird, weil die Dopplerverbreiterung nur mit der Wurzel der absoluten Temperatur in Kelvin ansteigt (siehe Anhang C.4).
Normalerweise steigt die Druckverbreiterung eines Übergangs mit steigender Teilchendichte und Temperatur über die Beziehung

$$\Delta\nu_C = const. \times N\sqrt{T} \tag{7.1}$$

an [Dem07]. Die Proportionalitätskonstante *const.* kann mit den bekannten Werten der Druckverbreiterung und der Teilchendichte bei $T = 185\,°\mathrm{C}$ bestimmt werden.
Für $T = 185\,°\mathrm{C}$ ergibt sich damit ein Maximum von $|S(\omega_1 + \omega_2)|^2 = 90\,\mathrm{cm}^2$, bei $T = 115\,°\mathrm{C}$ beträgt es dagegen $|S(\omega_1 + \omega_2)|^2 = 205\,\mathrm{cm}^2$. Sowohl die zunehmende Dopplerverbreiterung, als auch die zunehmende Druckverbreiterung tragen also dazu bei, dass das Maximum der Funktion $|S(\omega_1 + \omega_2)|^2$ mit steigender Temperatur abnimmt. In Abbildung 2.6 erkennt man, dass dieses Maximum gegenüber der Resonanz des ^{202}Hg-Isotops leicht verschoben ist. Diese Verschiebung ändert sich geringfügig mit der Temperatur. Dennoch kann die Verschiebung als konstant angenommen werden, weil das den berechneten maximalen Wert von $|S(\omega_1 + \omega_2)|^2$ nur um höchstens 0,25 % verfälscht. Es wird also für alle Temperaturen eine mittlere Verschiebung von $(\omega_1 + \omega_2)/2\pi - \Delta E_{2\gamma}/h = -0{,}4\,\mathrm{GHz}$ verwendet.
Mit der Änderung von $|S(\omega_1 + \omega_2)|^2$ mit der Temperatur ändert sich in gleicher Weise auch der Wert von $\left|\chi_a^{(3)}\right|^2$ (Abbildung 7.1). Damit bewirkt die Temperaturabhängigkeit von $|\chi_a^{(3)}|^2$ eine Verschiebung des Maximums der Lyman-α-Erzeugung zu niedrigeren Temperaturen (siehe Kapitel 7.5).

7.3 Die Phasenanpassungsfunktion $G^{(3)}$ mit Absorption des UV-Laserstrahls und genäherter Dichteverteilung der Quecksilberatome

Für die Berechnung der im Vier-Wellen-Misch-Prozess konvertierten Leistung nach Gleichung 2.45 muss nun noch der temperaturabhängige Wert der Phasenanpassungsfunktion $G^{(3)}$ bestimmt werden. Dabei sollen neben der Temperaturabhängigkeit von Δk auch die Absorption des ersten fundamentalen Laserstrahls und die Dichteverteilung des Quecksilberdampfes berücksichtigt werden. Die Verteilung des Quecksilberdampfes in der Lyman-α-Apparatur ist jedoch nicht bekannt. Aus diesem Grund wird nun zunächst eine plausible Abschätzung dieser Verteilung gemacht.
Der Aufbau der Lyman-α-Apparatur wurde in Kapitel 5.5 vorgestellt. Im Zentrum des Lyman-α-Erzeugungsbereichs befindet sich eine 1,5 cm lange beheizte Zelle an deren Boden das flüssige Quecksilber schwimmt. Diese Zelle hat zwei Löcher mit einem Durchmesser von jeweils etwa 1,5 mm, die Zugang für die Laserstrahlen schaffen sollen. Außerhalb der Dampfzelle befindet sich ein System gekühlter Blenden, an denen der Quecksilberdampf kondensiert, der dann über gekühlte Rohre wieder in die beheizte Zelle zurückgeführt wird.
Aufgrund dieses Aufbaus und der Homogenität der Temperatur der beheizten Zelle (Kapitel 5.5), wird zunächst von einer konstanten Dichte des Quecksilberdampfes innerhalb der Dampfzelle ausgegangen, die dann nach der Zelle exponentiell abnimmt. Für diesen Dichteverlauf, der in Abbildung 7.2 graphisch dargestellt ist, wird in An-

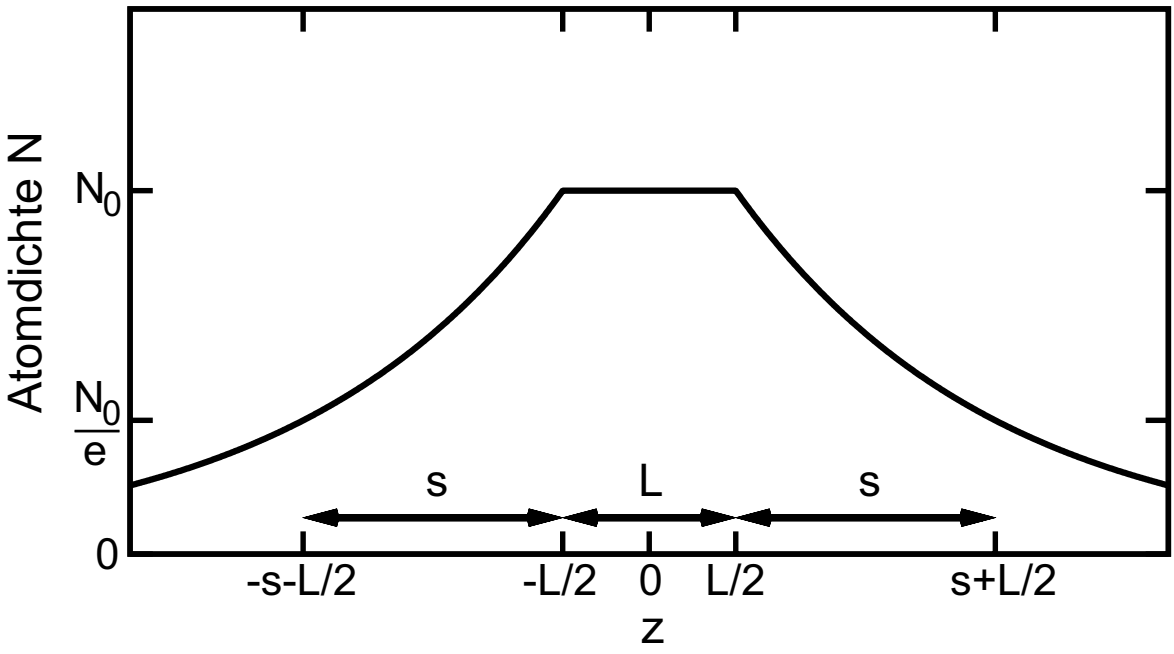

Abbildung 7.2: Möglicher Verlauf der Quecksilberatomdichte. *N_0 ist die maximale Quecksilberatomdichte; L ist die Länge der Zelle ($L = 1{,}5\,cm$) und s die Länge, nach der die Dichte auf $1/e$ ihres Maximalwertes N_0 abgefallen ist.*

hang A die Phasenanpassungsfunktion $G^{(3)}$ in eine Form gebracht, die dann in das Mathematica-Programm zur Berechnung der konvertierten Leistung bei Lyman-α eingefügt wird (Anhang D). Auch darauf, wie der Einfluss von Helium und die Absorption des UV-Laserstrahls in die Phasenanpassungsfunktion $G^{(3)}$ mit einberechnet werden können, wird in Anhang A ausführlicher eingegangen.

Damit allerdings die Absorption des UV-Laserstrahls überhaupt berücksichtigt werden kann, muss zunächst die Abhängigkeit des Absorptionskoeffizienten dieses Laserstrahls von der Temperatur des Quecksilberdampfes, beziehungsweise von der Temperatur der Quecksilberdampfzelle, bestimmt werden. Während des Scans der Quecksilbertemperatur wurde, wie in Kapitel 5.5 beschrieben, die durch den Vier-Wellen-Misch-Aufbau transmittierte und die eingestrahlte ultraviolette Leistung überwacht. Um die Schwankungen der eingestrahlten UV-Leistung aus dem transmittierten Wert herauszurechnen, wird zunächst die gemessene transmittierte Leistung durch den Wert der eingestrahlten Leistung geteilt. Der Wert bei der geringsten gemessenen Temperatur wird dann auf 1 normiert. Dies impliziert, dass bei einer Temperatur der Quecksilberdampfzelle von 155 °C noch keine signifikante Absorption stattfindet. Diese Annahme wird in Anhang B.2 näher begründet.

Die normierte UV-Transmission ist in Abbildung 7.3 gezeigt. Um eine kontinuierliche Funktion zu erhalten, die in die Phasenanpassungsfunktion eingesetzt werden kann, wird nun noch ein Polynom vierten Grades an die Datenpunkte gefittet, welches ebenfalls in Abbildung 7.3 dargestellt ist. Aus diesem Polynom und der Dichteverteilung wird dann der Absorptionskoeffizient des ersten fundamentalen Laserstrahls in

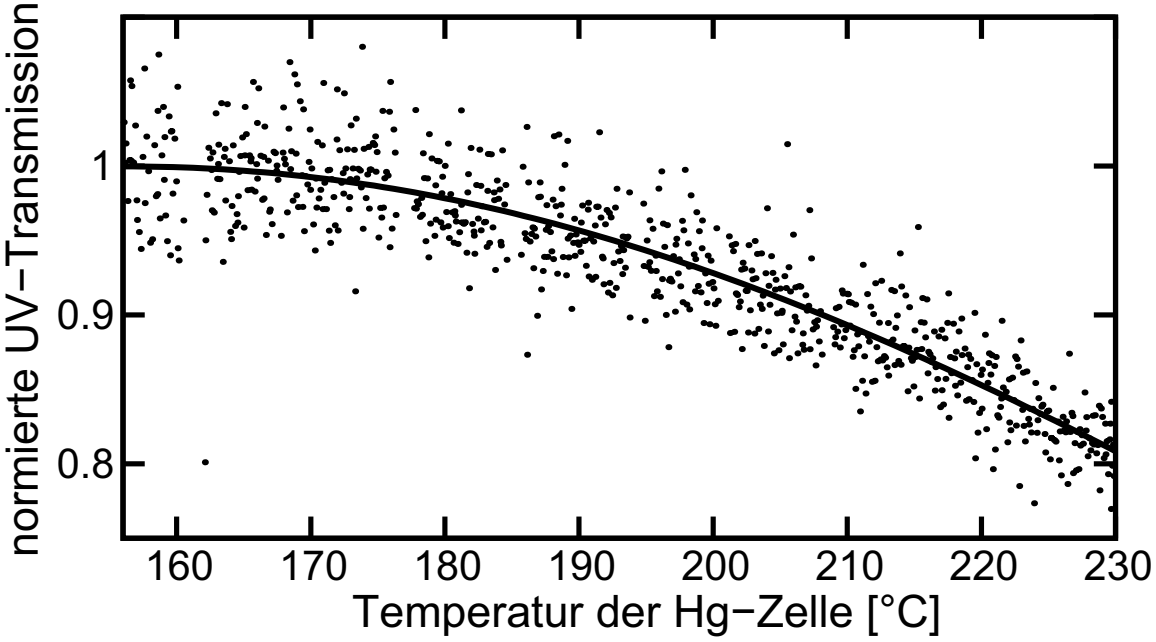

Abbildung 7.3: Normierte Transmission des ersten fundamentalen Laserstrahls durch die Lyman-α-Erzeugungsapparatur in Abhängigkeit von der gemessenen Temperatur der Dampfzelle. Die Verstimmung des Lasers zur $6^1\mathrm{S} - 6^3\mathrm{P}$-Resonanz beträgt -400 GHz. Die durchgezogene Linie ist ein an die Daten gefittetes Polynom vierten Grades.

Abhängigkeit von der Temperatur berechnet (Anhang B.1).
Alle anderen Laserstrahlen erfahren keine Absorption, da sie sich mit ihrer Wellenlänge nicht in der Nähe von Einphotonenresonanzen des Quecksilbers befinden. Wenn im Folgenden also von einem Absorptionskoeffizienten die Rede ist, ist immer der Absorptionskoeffizient des UV-Laserstrahls gemeint.
Mit diesem Dichteprofil und der bekannten Absorption des UV-Laserstrahls lässt sich nun die Phasenanpassungsfunktion $G^{(3)}$ berechnen und es sind somit alle Größen bestimmt, die zur Berechnung der konvertierten Leistung bei 121.56 nm benötigt werden.

7.4 Die Leistung bei Lyman-α in Abhängigkeit von der Temperatur

In Tabelle 7.1 sind die Werte aller variablen Größen zusammengefasst, wie sie bei der folgenden Berechnung der Leistung bei Lyman-α verwendet werden. Größen, die von der Temperatur abhängen, sind für die in Klammern stehende Temperatur angegeben. Berechnet man nun die Leistung bei Lyman-α, gewichtet das Ergebnis mit der Detektionseffizienz dieses Experiments, rechnet die Leistung in eine Anzahl an detektierten Photonen pro Sekunde um und multipliziert das Ergebnis mit dem Wert $\eta = 0{,}0231$, um das so berechnete theoretische Maximum an detektierten Photonen pro Sekunde an die tatsächlich gemessene Rate anzupassen, dann erhält man den Graphen aus Ab-

Tabelle 7.1: Größen zur Berechnung der erzeugten Leistung bei Lyman-α.

Größe	Wert
$\nu_0(^{202}\mathrm{Hg})$	$-400\,\mathrm{GHz}$
C	$-2{,}78 \times 10^{-16}\,\mathrm{cm}^2$
$N(155\,^\circ\mathrm{C})$	$7{,}62 \times 10^{16}\,\mathrm{cm}^{-3}$
$\Delta k(155\,^\circ\mathrm{C})$	$-21{,}2\,\mathrm{cm}$
N_{He}	$2{,}47 \times 10^{18}\,\mathrm{cm}^{-3} \mathrel{\widehat{=}} 100\,\mathrm{mbar}$
Δk_{He}	$+0{,}278\,\mathrm{cm}$
$\lvert S(\omega_1+\omega_2)\rvert^2\,(155^\circ\mathrm{C})$	$148\,\mathrm{cm}^2$
χ_{12}	$-3{,}58 \times 10^{-3}\,(q_e a_0)^2\,\mathrm{cm}$
χ_{34}	$4{,}83 \times 10^{-5}\,(q_e a_0)^2\,\mathrm{cm}$
$\lvert\chi_a^{(3)}(155\,^\circ\mathrm{C})\rvert^2$	$3{,}48 \times 10^{-60}\,\mathrm{cm}^{12}/\mathrm{erg}^2$
$b_1 = b_2 = b_3$	$0{,}16\,\mathrm{cm}$
L	$1{,}5\,\mathrm{cm}$
s	$1{,}5\,\mathrm{cm}$
$z_{0,1} = z_{0,2} = z_{0,3}$	$0\,\mathrm{cm}$
z'	$10^5\,\mathrm{cm}$
$\alpha_{0,1}(195\,^\circ\mathrm{C})$	$0{,}0188\,\mathrm{cm}^{-1}$
P_1	$0{,}24\,\mathrm{W}$
P_2	$0{,}16\,\mathrm{W}$
P_3	$0{,}15\,\mathrm{W}$
Detektionseffizienz	$6{,}0 \times 10^{-5}$

bildung 7.4. Man erkennt deutlich, dass er um etwa 40 °C neben der gemessenen Kurve liegt.

Wie schon in Kapitel 6.3 diskutiert, besteht Grund zu der Annahme, dass die Temperatur des Quecksilberdampfes nicht der gemessenen Temperatur der Quecksilberdampfzelle entspricht. Deshalb wird nun eine Temperaturverschiebung ΔT eingeführt, die die berechnete Kurve unter die gemessenen Daten legt, um die beiden Kurven besser miteinander vergleichen zu können. Abgesehen vom Messwert der normierten UV-Transmission werden zu diesem Zweck alle Werte bei der Temperatur $T - \Delta T$ berechnet und die Kurve dann über der Temperatur der Quecksilberdampfzelle T aufgetragen.

Mit einer Temperaturverschiebung von $\Delta T = 39\,^\circ\mathrm{C}$ und $\eta = 0{,}0234$ erhält man so die durchgezogene Kurve in Abbildung 7.5[1]. Deutlich zu erkennen ist, dass die berechnete

[1] η muss hier etwas größer gewählt werden, als bei der vorherigen Abbildung, weil hier der Absorptionskoeffizient durch die um $\Delta T = 39\,^\circ\mathrm{C}$ höhere Temperatur größer ist.

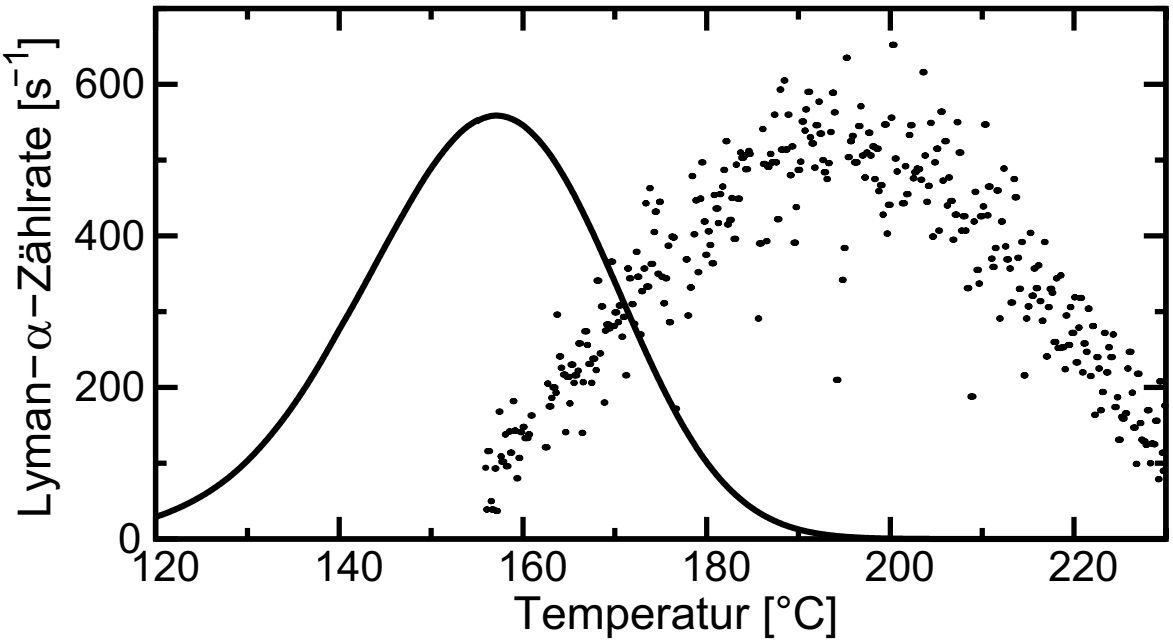

Abbildung 7.4: Gemessene und theoretisch berechnete Lyman-α Detektionsrate in Abhängigkeit von der Temperatur. Die gemessenen Datenpunkte sind über der gemessenen Temperatur der Quecksilberdampfzelle aufgetragen. Die Kurve wurde mit den Werten aus Tabelle 7.1 berechnet und anschließend auf die Höhe der Datenpunkte skaliert. Der Absorptionskoeffizient α_1 wurde nach Kapitel 7.3 aus der gemessenen Transmission des UV-Laserstrahls berechnet. Für Temperaturen $T \leq 155\,$°C wurde $\alpha_1 = 0$ gesetzt.

Kurve etwa 20 °C schmäler als die gemessene Kurve ist.

7.5 Betrachtung verschiedener Einflüsse auf das Ergebnis der Berechnung der Lyman-α-Leistung

In diesem Kapitel soll nun der Einfluss durch Veränderung verschiedener Parameter auf das Ergebnis der Rechnung untersucht werden. Dies trägt einerseits zum allgemeinen Verständnis der Thematik bei und ergibt andererseits, neben der Begründung aus Kapitel 6.3, weitere Möglichkeiten den Unterschied zwischen Rechnung und Messung zu erklären.
Die Abbildungen zu den folgenden Betrachtungen finden sich, der besseren Übersicht wegen, gesammelt im Anschluss an die Diskussion.

- **Die Konfokalparameter b_j (Abbildung 7.6):**
  Verkleinert man die Konfokalparameter b_j, so verschiebt sich die optimale Phasenanpassungstemperatur zu höheren Temperaturen und die konvertierte Leistung nimmt zu.
  Trägt man die Phasenanpassungsfunktion über $b\Delta k$ auf, so ist das Maximum der Funktion für eine bestimmte Absorption und unter Vernachlässigung der Dich-

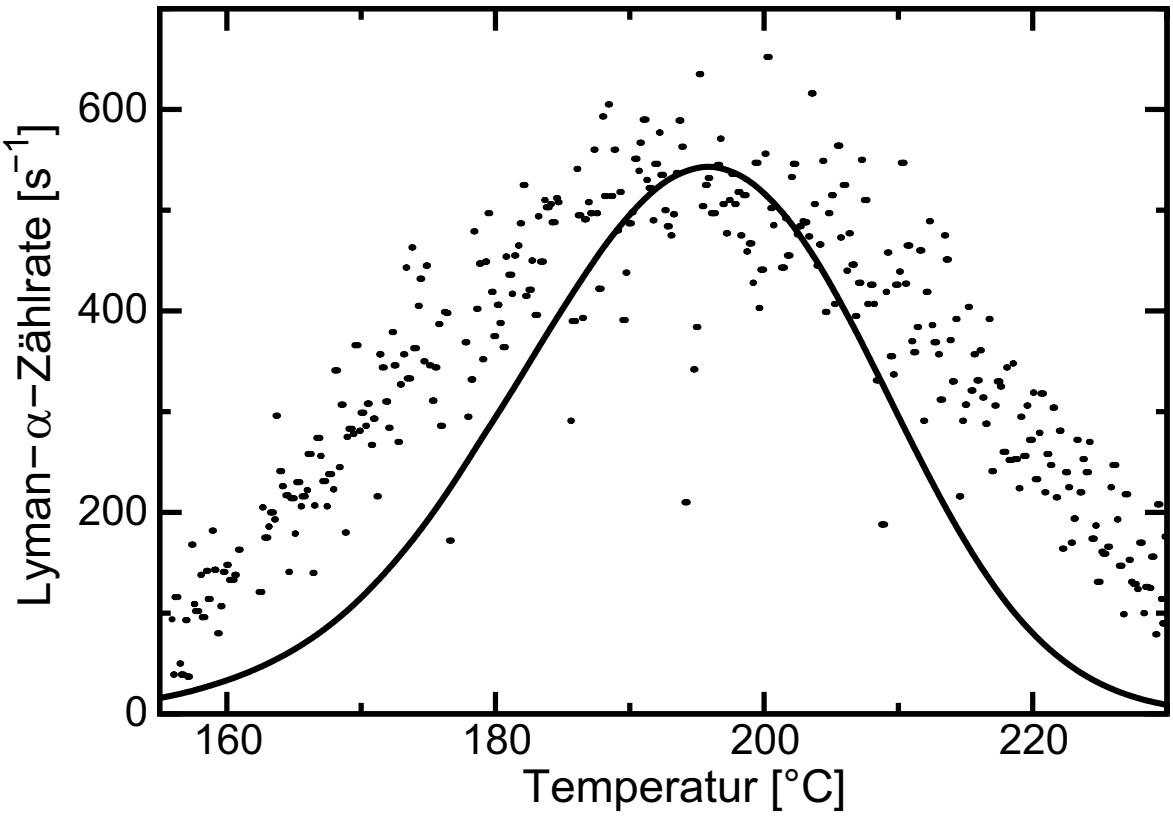

Abbildung 7.5: Gemessene und theoretisch berechnete Lyman-α Detektionsrate in Abhängigkeit von der Temperatur. Die gemessenen Datenpunkte sind über der gemessenen Temperatur der Quecksilberdampfzelle aufgetragen. Die durchgezogene Kurve zeigt die theoretisch berechnete und mit dem Faktor $\eta = 0{,}0234$ auf die Höhe der Datenpunkte skalierte Detektionsrate unter Einführung einer Temperaturverschiebung um $\Delta T = 39\,°\mathrm{C}$.

teverteilung $N(z)$ an einer festen Position auf der $b\Delta k$-Achse (siehe Abbildung 2.3). Ruft man sich ins Gedächtnis, dass $|\Delta k|$ mit der Dichte und damit auch mit der Temperatur zunimmt, kann somit die Verschiebung des Maximums verstanden werden, weil für einen kleineren Konfokalparameter b der Absolutbetrag der optimalen Phasenfehlanpassung $|\Delta k|$ und damit der Wert der optimalen Temperatur zunimmt.

Die konvertierte Leistung schließlich ist für identische Konfokalparameter b proportional zu $1/b^2$ (Gleichung 2.45), weshalb die maximale konvertierte Leistung für beispielsweise halb so große b-Parameter das Vierfache des ursprünglichen Wertes beträgt. Weil aber auch die Absorption und auch $\chi_a^{(3)}$ von der Temperatur abhängen, wird der Einfluss der Verkleinerung von b etwas abgedämpft.

Abbildung 7.6 zeigt, dass in der Praxis jeder der fundamentalen Konfokalparameter für sich so klein wie möglich gewählt werden sollte.

- **Verschiebung der Fokuspositionen $z_{0,j}$ der Fundamentalstrahlen (Abbildung 7.7):**

Eine Verschiebung aller Fokuspositionen um 0,5 cm in Richtung Zelleneingang erhöht die konvertierte Leistung marginal, da dort der UV-Laser noch nicht so stark absorbiert wurde. Eine Verschiebung der Fokuspositionen gegeneinander führt dagegen zu einer Verringerung der optimalen Phasenanpassungstemperatur und zu einer Verringerung der maximalen konvertierten Leistung.
Um die Verringerung der Phasenanpassungstemperatur verstehen zu können, soll zunächst eine anschauliche Erklärung für das Abfallen des optimalen Wertes von $|\Delta k|$ mit steigenden Konfokalparametern geliefert werden. Wie in Kapitel 2.2 schon angedeutet, sammelt jeder fokussierte Gaußstrahl beim Durchgang durch seinen Fokus eine zusätzliche Phase von π, die sogenannte Gouy-Phase, auf [Sie86, Boy03]. Die beim Vier-Wellen-Mischen erzeugte nichtlineare Polarisation akkumuliert die Phase der drei einfallenden Strahlen und damit dreimal so viel zusätzliche Guoy-Phase, wie eine der einfallenden Wellen. Aus diesem Grund kann die nichtlineare Polarisation nur effizient an die erzeugte Welle koppeln, wenn eine Phasenfehlanpassung $\Delta k = k_4 - (k_1 + k_2 + k_3)$ eingeführt wird, die die schnellere Akkumulation der nichtlinearen Polarisation ausgleicht[2]. Je kleiner die b-Parameter der fundamentalen Strahlen sind, desto schneller kommt die Polarisation mit der erzeugten Welle außer Phase und desto größer muss $|\Delta k|$ sein um dies wieder auszugleichen. Schiebt man die Foki der fundamentalen Strahlen nun auseinander, so sammelt die nichtlineare Polarisation die Phasen der drei fundamentalen Strahlen langsamer auf, als wenn alle Foki am selben Ort sind und der optimale Absolutbetrag $|\Delta k|$ wird kleiner, was zu einer niedrigeren optimalen Temperatur führt.
Die Verringerung der maximalen erzeugten Leistung kann wieder durch einen Vergleich mit der Änderung der Konfokalparameter verstanden werden. Eine Vergrößerung der Konfokalparameter führt zu einer Verringerung der maximalen Leistungsdichte der fundamentalen Strahlen und damit zu geringerer Konversionseffizienz. Auch eine relative Verschiebung der Fokuspositionen zueinander führt zu einer Verringerung der maximalen Leistungsdichte und so ebenfalls zu geringerer Konversionseffizienz.
Es zeigt sich also, dass die fundamentalen Strahlen ihre Foki für maximale Konversionseffizienz so gut wie möglich überlagert haben sollten.

- **Änderung des Dichteprofils $N(z)$ über den Parameter s (Abbildung 7.8):**
  Der Parameter s bestimmt, wie steil der exponentielle Abfall der Dichte am Rand der Zelle angenommen werden soll (siehe Abbildung 7.2).
  Wird s sehr klein und damit das Profil beinahe rechteckig, so kommt es zu einer

[2] k_4 muss also kleiner als die Summe der fundamentalen Wellenvektoren sein, da die erzeugte Welle schneller als die nichtlineare Polarisation propagieren muss, um die zusätzliche Phase wieder auszugleichen. Deshalb kann auch nur für $\Delta k < 0$ effizientes Vier-Wellen-Mischen durchgeführt werden.

Deformation der Lyman-α-Erzeugungskurve. Wird s dagegen sehr groß, so hat das keinen Einfluss auf die berechnete Kurve.
Die Deformation bei sehr kleinen s wird davon hervorgerufen, dass die b-Parameter nur etwa neunmal kürzer sind als die Zellenlänge und somit noch nicht das Limit harter Fokussierung erreicht ist. Dadurch werden Randeffekte der Zelle sichtbar, die vom abrupten Ende des nichtlinearen Mediums hervorgerufen werden. Hierzu sei auch auf die entsprechenden Graphen in [Bjo75] verwiesen.
Vergrößert man s nun wieder, so werden diese Randeffekte der Zelle schon bei kleinen Werten von s ausgeblendet wodurch sich dasselbe Profil wie im Limit harter Fokussierung ergibt. Auch am Einfluss der Absorption ändert sich zu großen s nichts mehr. Das liegt daran, dass der Absorptionskoeffizient aus einer Transmissionsmessung unter Berücksichtigung des symmetrischen Dichteprofils berechnet wird. Dadurch wird bis zur Zellenmitte, dem Ort der Foki, für alle Werte von s immer der gleiche Anteil an fundamentaler Leistung absorbiert.

- **Der Einfluss der Absorption des ersten fundamentalen Laserstrahls (Abbildung 7.9):**
  Die Vernachlässigung der Absorption des UV-Laserstrahls erhöht die konvertierte Leistung leicht, weil so mehr fundamentales Licht zur Konversion zur Verfügung steht. Dies ist auch der Grund, dass das Maximum bei Vernachlässigung der Absorption zu höheren Temperaturen hin verschoben wird, da nun die zur Verfügung stehende Leistung nicht mehr mit der Temperatur abnimmt.

- **Der Einfluss von Helium (Abbildung 7.10):**
  100 mbar Helium haben nur einen geringen Einfluss auf die erzeugte Leistung bei Lyman-α. Mit steigendem Heliumdruck nimmt dieser aber zu und verschiebt das Maximum der Konversion zu höheren Dichten und erhöht damit auch die maximale Konversionseffizienz.
  Leicht vereinfacht dargestellt, leistet Helium einen positiven Beitrag zur Phasenfehlanpassung Δk, was durch eine höhere Quecksilberdampfdichte, die einen negativen Beitrag leistet, kompensiert werden muss, um den optimalen Wert der Phasenfehlanpassung zu erhalten. Auf der Kurve zu einem Bar Helium kann bei genauerem Hinsehen eine Struktur erkannt werden. Diese Struktur entsteht dadurch, dass der konstante positive Beitrag des Heliums in den Randbereichen der Dichteverteilung relativ zum, von der Dichte abhängigen, Wert des Quecksilbers einen stärkeren Einfluss hat als auf dem Plateau der Dichteverteilung und sich somit, wie schon bei der Verkleinerung des Parameters s, wieder Randeffekte einstellen.
  Eine Verbreiterung der $6^1\mathrm{S} - 6^3\mathrm{P}$-Resonanz mit zunehmendem Heliumdruck wurde bei dieser Betrachtung nicht berücksichtigt. Diese würde die Absorption des UV-Laserstrahls verstärken und so, je nach Verstimmung dieses Lasers zur Resonanz, der Erhöhung der erzeugten Lyman-α-Leistung entgegenwirken.

- **Der Einfluss der temperaturabhängigen Verbreiterung der Funktion $|S(\omega_1+\omega_2)|^2$ (Abbildung 7.11):**
  Zur Untersuchung dieses Einflusses, soll die Verbreiterung von $|S(\omega_1+\omega_2)|^2$ als konstant angenommen werden. Es wird der Wert der Verbreiterung aus dem Fit an die experimentellen Daten aus Kapitel 2.4 verwendet, also die Verbreiterung bei einer Temperatur der Dampfzelle von 225 °C. Für die so berechnete Kurve verringert sich die konvertierte Leistung bei Temperaturen unter 225 °C und das Maximum der Kurve wird um 2 °C zu höheren Temperaturen verschoben, weil nun $|\chi_a^{(3)}|^2$ statt des, mit steigender Temperatur, abfallenden Verlaufes aus Abbildung 7.1 den konstanten Wert $|\chi_a^{(3)}|^2(186\,^\circ\mathrm{C}) = 2{,}08\times10^{-60}\,\mathrm{cm}^{12}/\mathrm{erg}^2$ einnimmt. Zur besseren Vergleichbarkeit wurde die verschobene Kurve in der Höhe wieder auf den Wert der ursprünglichen Kurve skaliert und mit in den Plot eingetragen. So kann man erkennen, dass sich die Breite der Kurve nicht merklich verändert. Auch bei der Druckverbreiterung der Funktion $|S(\omega_1+\omega_2)|^2$ wurde der Einfluss von Helium in die Temperaturabhängigkeit nicht berücksichtigt. Um eine genauere Kenntnis der Temperaturabhängigkeit von $|S(\omega_1+\omega_2)|^2$, auch unter dem Einfluss von Helium zu erhalten, sind weitere Scans des blauen Lasers über die Zwei-Photonen-Resonanz bei unterschiedlichen Quecksilbertemperaturen nötig.

Diese Simulationen zeigen, dass kleinere Konfokalparameter der fundamentalen Strahlen die Phasenanpassungstemperatur erhöhen könnten. Allerdings wurden diese b-Parameter experimentell bestimmt (Kapitel 5.4). Damit können alle hier besprochenen Einflüsse die Verschiebung und Verbreiterung der gemessenen Phasenanpassungskurve gegenüber der berechneten Kurve also nicht erklären.

Auswirkungen eines anderen Dichteprofils

In Kapitel 7.3 wurde aufgrund des Aufbaus der Quecksilberapparatur und insbesondere wegen der Gestalt der beheizten Zelle eine plausible Abschätzung des Dichteprofils des Quecksilberdampfes in der Apparatur gemacht. Dennoch kann nicht mit Sicherheit davon ausgegangen werden, dass dieses bisher angenommene kastenförmige Dichteprofil mit exponentiellem Abfall am Zellenrand auch dem wirklich in der Apparatur ausgebildetem Profil entspricht. Aus diesem Grund soll nun untersucht werden, welche Auswirkungen es hat, wenn stattdessen ein lorentzförmiges Dichteprofil

$$N(z) = N_0 \times \left(1 + \left(\frac{2z}{\beta}\right)^2\right)^{-1} \tag{7.2}$$

für die Rechnungen angenommen wird. Dabei ist β die Breite des Lorentzprofils gemessen an seiner halben Höhe. Diese wird, so nicht anders angegeben, gleich der Länge der Dampfzelle $L = 1{,}5\,\mathrm{cm}$ genommen. Dieses Dichteprofil kann analog zu Anhang A in die Phasenanpassungsfunktion und das Mathematica-Programm ein-

gebaut werden (siehe Anhang D). Der Wert des Absorptionskoeffizienten des UV-Laserstrahls bei der maximalen Dichte N_0 berechnet sich für diese Dichteverteilung zu $\alpha_{0,1}(195\,^\circ\mathrm{C}) = 0{,}0479\,\mathrm{cm}^{-1}$. Abgesehen vom Parameter s, der hier nicht mehr benötigt wird, werden ansonsten wieder die Werte aus Tabelle 7.1 verwendet. Nun soll zunächst die für die Lorentzverteilung berechnete Kurve der konvertierten Leistung bei Lyman-α mit der für die alte Dichteverteilung verglichen werden und dann ein wichtiger Unterschied zu der alten Dichteverteilung herausgearbeitet werden.

- **Vergleich des Einflusses der beiden unterschiedlichen Dichteprofile (Abbildung 7.12):**
  Für ein lorentzförmiges Dichteprofil der Breite $\beta = 1{,}5\,\mathrm{cm}$ gibt es kaum eine merkliche Änderung zum kastenförmigen Dichteprofil mit exponentiell abfallenden Rändern. Das liegt daran, dass die Foki wieder in der Mitte der Zelle am Maximum der Quecksilberdampfdichte liegen und dieses Maximum bei beiden Dichteverteilungen gleich von der Temperatur abhängt. Außerdem ist die Dichte für dieses Lorentzprofil über den gesamten Fokusbereich, in dem hauptsächlich die Konversion stattfindet, beinahe konstant. Verzerrungen der Kurve durch Randeffekte gibt es auch keine, da das Lorentzprofil keinen plötzlichen, sehr steilen Abfall oder Anstieg aufweist.
  Für ein Lorentzprofil, das nur noch eine Breite von $\beta = \frac{1}{4} \times 1{,}5\,\mathrm{cm}$ aufweist, ändert sich die Dichte im Bereich der 0,16 cm langen Foki schon um 15 %. Um insgesamt über den gesamten Fokus dieselbe Phasendifferenz wie die nichtlineare Polarisation zu akkumulieren, muss daher $|\Delta k|$ im Zentrum des Fokus etwas größer sein, um das kleinere $|\Delta k|$ am Fokusrand wieder auszugleichen. Das heißt, das Maximum der Dichte N_0 und damit auch die Temperatur des Quecksilbers, die dieses Maximum bestimmt, müssen höher sein, um optimal Leistung zu konvertieren.
  Zudem begünstigt solch ein Lorentzprofil gegenüber der Kastenform die Phasenanpassung. Die Geschwindigkeit, mit der die Guoy-Phase akkumuliert wird, ist im Bereich des Fokus am größten [Sie86] und im Zentrum des Lorentzprofils ist die Fehlanpassung der Wellenvektoren $|\Delta k|$ größer als zum Rand hin. Dadurch können die Phasen der nichtlinearen Polarisation und die der erzeugten Welle besser aufeinander abgestimmt werden, was die einzelnen erzeugten Teilwellen, im Sinne einer höheren erzeugten Leistung, besser miteinander interferieren lässt.

- **Verschiebung der Fokuspositionen $z_{0,j}$ der Fundamentalstrahlen und Änderung der Breite des Lorentzprofils (Abbildungen 7.13 und 7.14):**
  Verschiebt man die Foki der Fundamentalstrahlen gegenüber dem Zentrum der lorentzförmigen Dichteverteilung um $z_{0,1} = z_{0,2} = z_{0,3} = -0{,}5\,\mathrm{cm}$, so erhöht sich die optimale Phasenanpassungstemperatur und die maximale konvertierte Leistung sinkt. Die Temperatur wird bei der Berechnung der im Vier-Wellen-Mischen konvertierten Leistung immer in die maximale Dichteverteilung N_0 umgerechnet.

Deshalb benötigt man eine höhere Temperatur, um an der Stelle der Foki wieder die optimale Dichte für die Phasenanpassung zu erhalten. Dabei sinkt die maximale erzeugte Leistung trotz der geringeren Absorption bis zum Fokus ab, weil die Phasen der nichtlinearen Polarisation und der erzeugten Welle durch den Dichteanstieg im Bereich der Foki nicht mehr so effizient aneinander angepasst sind.

Wird zusätzlich zur Verschiebung der Foki noch ein schmäleres Dichteprofil mit der Breite $\beta = 0{,}38 \times 1{,}5\,\mathrm{cm} = 0{,}57\,\mathrm{cm}$ angenommen, so verschiebt sich das Maximum der Konversion noch weiter zu höheren Temperaturen, da dadurch die Foki noch weiter auf der Flanke des Dichteprofils liegen. Auch ist der Unterschied der Dichteverteilung über den Bereich der Foki noch größer geworden, was die erzeugte Leistung weiter absinken lässt.

Nimmt man für diese Verschiebung der Foki und diese Breite des Lorentzprofils die künstlich eingeführte Temperaturverschiebung wieder heraus, das heißt man setzt $\Delta T = 0$, so liegt die berechnete Kurve nun gut unter den Datenpunkten und lässt sich durch eine Neuskalierung auf die Höhe der Datenpunkte bringen (Abbildung 7.14). Diese Kurve weicht auch in der Breite nur noch um etwa 5 °C von den gemessenen Werten ab.

Der Unterschied zwischen den gemessenen Werten und der berechneten Kurve könnte also auch durch ein steiles Dichteprofil, gepaart mit einer schlechten Justage der Foki auf sein Zentrum, erklärt werden. Allerdings ist die Mitte der Dampfzelle von außen recht gut zu bestimmen und es ist davon auszugehen, dass die Foki für die Messung nicht weiter als einen halben Zentimeter von der Mitte der Zelle verjustiert waren. Des Weiteren gibt es keinen Grund anzunehmen, dass das Maximum der Dichteverteilung in einer konstant von allen Seiten beheizten Zelle, das heißt für eine Zelle in der es für den Quecksilberdampf bis auf die beiden Aperturen keine Senken geben sollte, von der Mitte der Zelle abweicht. Aufgrund dieses Aufbaus erscheint es auch unwahrscheinlich, dass die Quecksilberdampfdichte von der Mitte der Zelle bis 0,25 cm vor der Apertur der Zelle, das ist der Ort der verschobenen Foki, schon auf einen Wert von 25 % ihres Maximums abgefallen sein soll. So könnten zwar die verschobenen Foki und das Dichteprofil für einen Teil, nicht aber für den gesamten Unterschied der gemessenen Datenpunkte zu den gerechneten Kurven verantwortlich gemacht werden.

Eine Überprüfung des Dichteprofils ist jedoch mit einem Verschieben der Foki über den Bereich der Zelle möglich. Für das schmale lorentzförmige Dichteprofil würde man bei einer Temperatur von $T = 196\,°\mathrm{C}$ die in Abbildung 7.15 dargestellte konvertierte Leistung in Abhängigkeit der Fokuspositionen detektieren. Die beiden Maxima befinden sich auf der rechten und linken Flanke des Dichteprofils dort, wo die Phasenanpassung ihren besten Wert erreicht. Dabei ist das Maximum auf der rechten Flanke der Dichteverteilung etwas niedriger, weil dort der UV-Laser schon mehr Absorption beim Durchgang durch den Quecksilberdampf erfahren hat. Zwischen den beiden Maxima

liegt ein Minimum, an dem die Fehlanpassung der Wellenvektoren so schlecht ist, dass es beinahe zu vollständig destruktiver Interferenz der erzeugten Teilwellen bei Lyman-α kommt.
Es sei noch angemerkt, dass auch bei dieser Erklärung der Verschiebung der Phasenanpassungskurve der Haupteffekt wieder derselbe ist wie schon bei der Erklärung nach Kapitel 6.3, nämlich, dass an der Stelle der Foki nicht der Druck herrscht, wie er aufgrund der gemessenen Temperatur der beheizten Quecksilberdampfzelle angenommen wird.

Hier folgen nun die unterschiedlichen Kurven, die im letzten Abschnitt behandelt wurden.

Dabei ist die durchgezogene Kurve immer die Kurve aus Abbildung 7.5, die dort an die Daten angepasst wurde. Eine Ausnahme bildet Abbildung 7.13. Dort ist die durchgezogene Kurve für eine lorentzförmige Dichteverteilung der Breite $\beta = 1{,}5\,\mathrm{cm}$ mit den Foki in der Zellenmitte gerechnet. Es ist also die gestrichelte Kurve aus Abbildung 7.12, die dort fast hinter der durchgezogenen Kurve verschwindet.
Die durchgezogene Kurve wird in den Abbildungen mit „**kL**“ für „kontinuierliche Linie“ bezeichnet. Für diese Kurve, deren Parameter in Tabelle 7.1 zusammengefasst sind, werden bei den jeweiligen Abbildungen zur einfacheren Vergleichbarkeit nochmals die Werte aufgeführt, die bei den anderen Kurven verändert wurden. Die dick gestrichelten Kurven, das ist zum Beispiel die höhere der beiden gestrichelten Kurven in Abbildung 7.6, werden in den Abbildungen mit „**DL**“ für „dicke Linie“ und die dünn gestrichelten Kurven mit „**dl**“ für „dünne Linie“ bezeichnet. Es sind hier auch wieder nur die Parameter angegeben, die relativ zu der durchgezogenen Kurve verändert wurden. Parameter die für alle Kurven gelten, stehen über den Angaben zu den einzelnen Kurven.

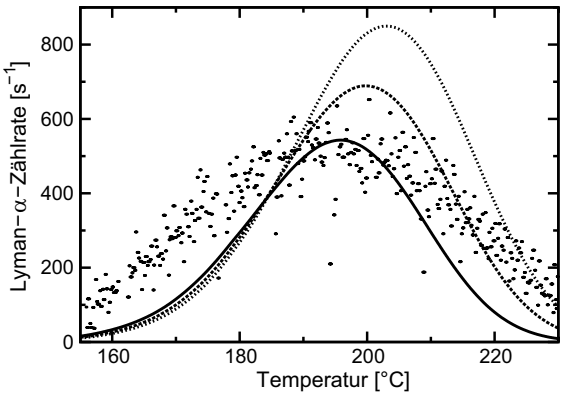

Abbildung 7.6:
kL: $b_1 = b_2 = b_3 = 0{,}16\,\mathrm{cm}$
DL: $b_1 = 0{,}16\,\mathrm{cm}$, $b_2 = 0{,}14\,\mathrm{cm}$,
$b_3 = 0{,}12\,\mathrm{cm}$
dl: $b_1 = b_2 = b_3 = 0{,}12\,\mathrm{cm}$

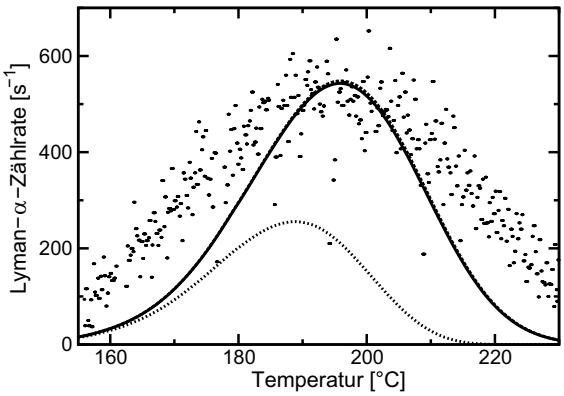

Abbildung 7.7:
kL: $z_{0,1} = z_{0,2} = z_{0,3} = 0\,\mathrm{cm}$
DL: $z_{0,1} = z_{0,2} = z_{0,3} = -0{,}5\,\mathrm{cm}$
dl: $z_{0,1} = 0\,\mathrm{cm}$, $z_{0,2} = -0{,}08\,\mathrm{cm}$,
$z_{0,3} = +0{,}08\,\mathrm{cm}$

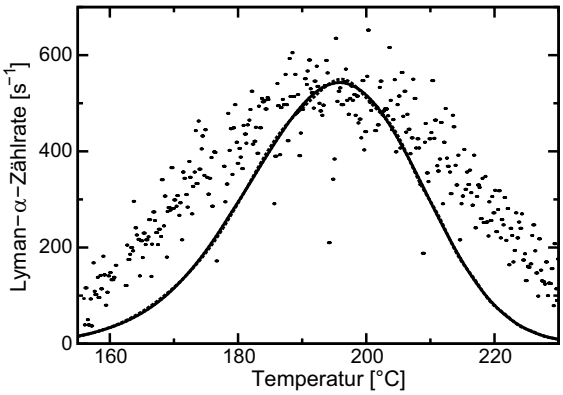

Abbildung 7.8:
kL: $s = L = 1{,}5\,\mathrm{cm}$
DL: $s = 10^{-6}L$
dl: $s = 10^{5}L$, verschwindet hinter **kL**

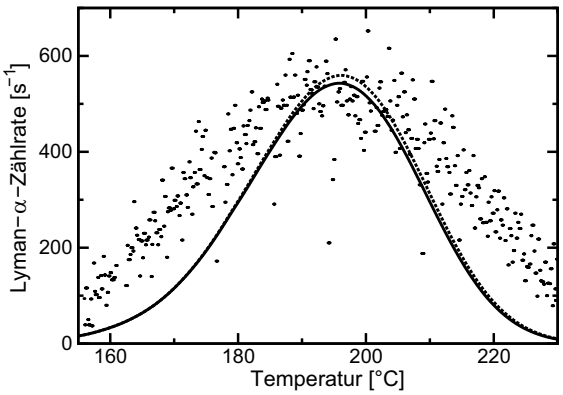

Abbildung 7.9:
kL: α_1 abhängig von T und $N(z)$
DL: $\alpha_1 = 0\,\mathrm{cm}^{-1}$

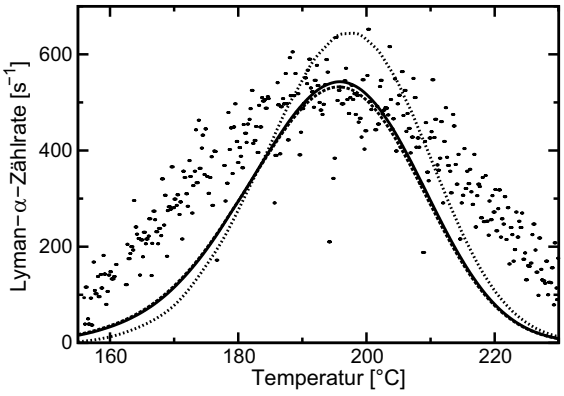

Abbildung 7.10:
kL: $p_{\mathrm{He}} = 100\,\mathrm{mbar}$
DL: $p_{\mathrm{He}} = 0\,\mathrm{mbar}$
dl: $p_{\mathrm{He}} = 1000\,\mathrm{mbar}$

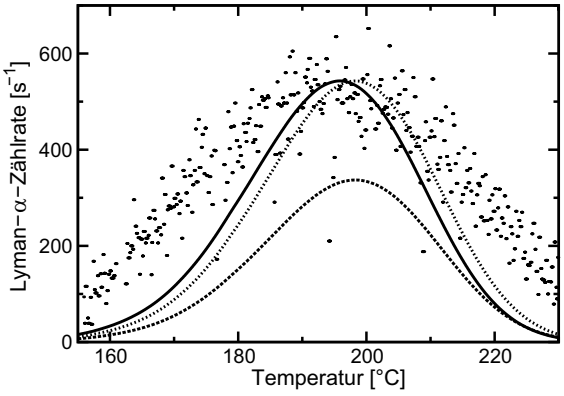

Abbildung 7.11:
kL: $|\chi_a^{(3)}|^2(T)$, $\eta = 0{,}0234$
DL: $|\chi_a^{(3)}|^2(185\,^\circ\mathrm{C})$, $\eta = 0{,}0234$
dl: $|\chi_a^{(3)}|^2(185\,^\circ\mathrm{C})$, $\eta = 0{,}0376$

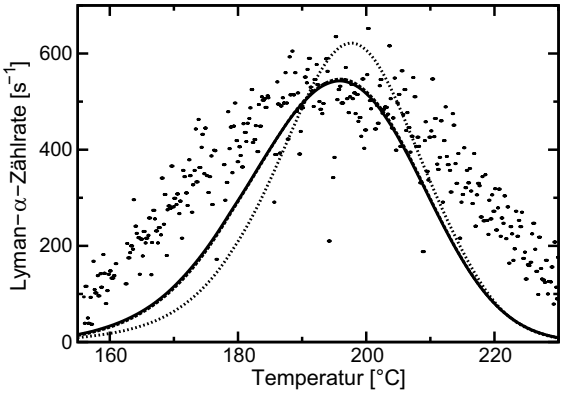

Abbildung 7.12:
kL: $N(z)$ kastenförmig, $s = 1{,}5\,\mathrm{cm}$
DL: $N(z)$ lorentzförmig, $\beta = 1{,}5\,\mathrm{cm}$
dl: $N(z)$ lorentzförmig, $\beta = 0{,}38\,\mathrm{cm}$

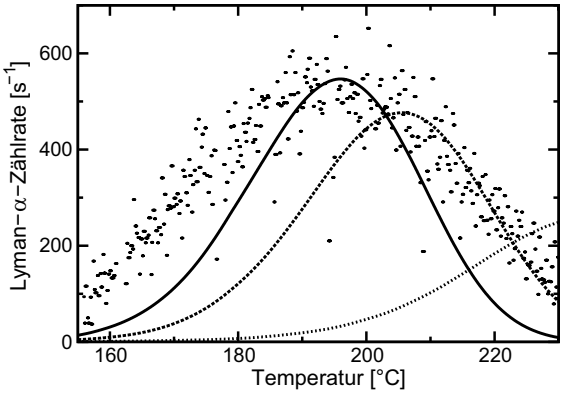

Abbildung 7.13:
$N(z)$ lorentzförmig
kL: $z_0 = 0\,\mathrm{cm}$, $\beta = 1{,}5\,\mathrm{cm}$
DL: $z_0 = -0{,}5\,\mathrm{cm}$, $\beta = 1{,}5\,\mathrm{cm}$
dl: $z_0 = -0{,}5\,\mathrm{cm}$, $\beta = 0{,}57\,\mathrm{cm}$

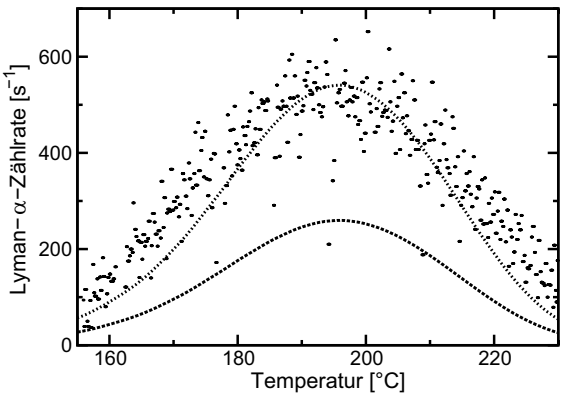

Abbildung 7.14:
$N(z)$ lorentzförmig, $\Delta T = 0\,^{\circ}\mathrm{C}$,
$z_0 = -0{,}5\,\mathrm{cm}$, $\beta = 0{,}57\,\mathrm{cm}$
DL: $\eta = 0{,}0234$
dl: $\eta = 0{,}0487$

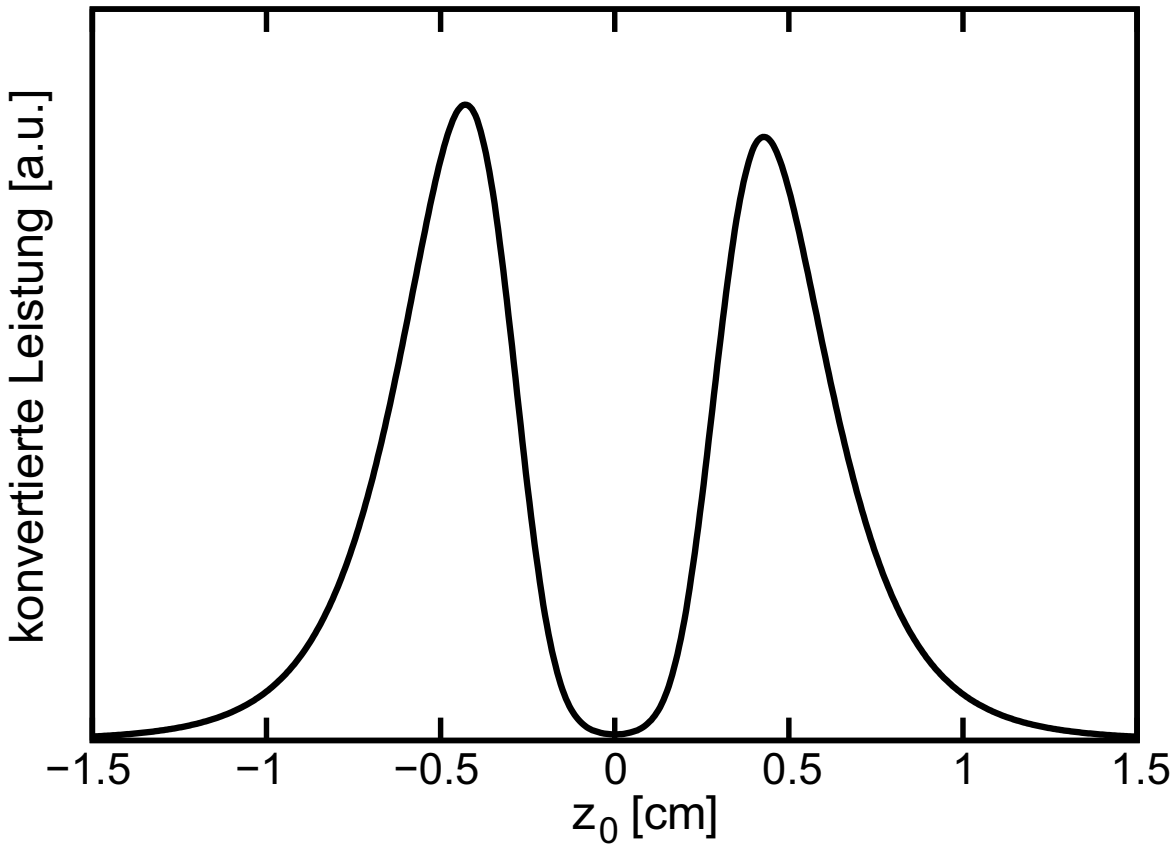

Abbildung 7.15: Erzeugte Leistung bei Lyman-α über der Position der Foki z_0 der drei fundamentalen Laserstrahlen relativ zum Maximum des lorentzförmigen Dichteprofils der Breite $\beta = 0{,}38 \times 1{,}5\,\mathrm{cm} = 0{,}57\,\mathrm{cm}$. Die Temperatur, die die Quecksilberdichte am Maximum des Lorentzprofils bestimmt, beträgt 195 °C und die Temperaturverschiebung ist $\Delta T = 0\,°\mathrm{C}$.

Kapitel 8

Zusammenfassung

Im Rahmen dieser Arbeit wurde eine schmalbandige kontinuierliche kohärente Lyman-α-Quelle basierend auf Festkörperlasersystemen zur zukünftigen Kühlung von Antiwasserstoff aufgebaut. Die fundamentalen Festkörperlasersysteme ermöglichen es im Vier-Wellen-Misch-Prozess zur Erzeugung der Lyman-α-Strahlung nicht nur die 6^1S – 7^1S-Zwei-Photonen-Resonanz des Quecksilbers sondern erstmals auch die 6^1S – 6^3P-Ein-Photonen-Resonanz zur Erhöhung der Konversionseffizienz optimal zu nutzen. In ersten Messungen wurden 0,063 nW Leistung bei Lyman-α erzeugt. Es wird erwartet, dass diese Leistung in naher Zukunft durch optimierte Strahlformung und Justage, sowie durch Erhöhung der Leistungen der fundamentalen Lasersysteme noch deutlich gesteigert werden kann. Mit dieser Lyman-α-Quelle war es, durch die Nähe des ersten fundamentalen Lasers zur Ein-Photonen-Resonanz, erstmals möglich den kompletten Verlauf der Phasenanpassungskurve des Vier-Wellen-Misch-Prozesses aufzunehmen.
Neben den fundamentalen Lasersystemen und der Lyman-α-Erzeugung selbst, wurde in dieser Arbeit die Detektion der produzierten Lyman-α-Strahlung mit einem Photomultiplier vorgestellt, die soweit optimiert wurde, dass eine zuverlässige Abschätzung der erzeugten Leistung möglich ist. Für diesen Zweck wurde zudem ein Teststand aufgebaut, mit dem die Transmissivität der Optiken, welche in der Lyman-α-Apparatur verwendet werden, bei 121,56 nm gemessen wurde.
Um die Lyman-α-Erzeugung nicht nur experimentell sondern auch theoretisch zu beherrschen, wurde des Weiteren eine vielseitige Rechnung präsentiert, welche die erzeugte Leistung bei Lyman-α, unter anderem in Abhängigkeit von der Temperatur, der Absorption des ersten fundamentalen Laserstrahls, dem Dichteprofil des Quecksilberdampfes und unter dem Einfluss eines Puffergases, bestimmt.

Anhang A

Die Phasenanpassungsfunktion unter Berücksichtigung der Hg-Dichteverteilung, Absorption und Helium

Die allgemeine Phasenanpassungsfunktion $G^{(3)}$ aus Gleichungen 2.46 und 2.40 sei hier nochmals gegeben, wobei schon die komplexen Wellenvektoren $\hat{k}_j$ zur Berücksichtigung der Absorption aber nicht zur Berücksichtigung von Helium verwendet werden:

$$G^{(3)} = (b_1 \Delta k_0)^2 \, 16 k_4 \left(\prod_{j=1}^{3} \frac{1}{b_j} \right) \int_0^\infty r' \left| \exp\left[i \int_{-\infty}^{z'} \hat{k}_4(z'') dz'' \right] \right. \tag{A.1}$$

$$\left. \times \int_{-\infty}^{\infty} \frac{S(z)}{a(z,z')} \exp\left[-r'^2 q(z,z') \right] \exp\left[-i \int_{-\infty}^{z} \Delta\hat{k}(z'') dz'' \right] dz \right|^2 dr'$$

In einer reinen Quecksilberatmosphäre hat $\Delta\hat{k}(z'')$ für die Verstimmungen unserer Laser zu den Ein-Photonen-Resonanzen des Quecksilbers nach Gleichungen 2.41, 2.42 und 2.44 einen reellen Anteil, der proportional zur Dichteverteilung $N(z'')$ und einen imaginären Anteil, der proportional zu $N^2(z'')$ ist:

$$\Delta\hat{k}(z'') = \frac{N(z'')}{N_0} \Delta k_0 + \left(\frac{N(z'')}{N_0} \right)^2 \frac{\Delta\alpha_0}{2} \tag{A.2}$$

mit

$$\Delta\alpha_0 = \alpha_{4,0} - (\alpha_{1,0} + \alpha_{2,0} + \alpha_{3,0}) \,, \tag{A.3}$$

wobei α_0 den Absorptionskoeffizienten bei der Dichte N_0 bezeichnet.
Für beliebige Dichteverteilungen ist das Integral nach dz'' in Gleichung A.1 im Allgemeinen nur numerisch zu lösen. Seine Obergrenze z ist Integrationsparameter eines weiteren Integrals, das im Allgemeinen auch nur numerisch zu lösen ist. Es müsste also für das Integral nach dz'' eine Tabelle von Resultaten für unterschiedliche Obergrenzen

z erstellt werden, die so angepasst sind, dass mit diesen dann die zweite numerische Integration nach dz durchgeführt werden kann. Alternativ könnten aus den dicht genug in z liegenden Resultaten der ersten Integration natürlich auch die benötigten dazwischen liegenden Werte für die zweite Integration angenähert werden.
Weil für die Praxis aber schnell Ergebnisse für unterschiedliche Parameterwahlen erzeugt werden sollen, und die Dichteverteilung ohnehin nicht gut bekannt ist, ist es zweckmäßig die Dichteverteilung durch eine analytisch integrierbare Funktion anzunähern, und dann nur noch das Integral nach dz numerisch durchzuführen.
Wie im Kapitel 7.3 schon beschrieben, soll zunächst von einer konstanten Dichteverteilung innerhalb der Zelle ausgegangen werden, die dann einen bestimmten exponentiellen Abfall im Kondensationsbereich der Apparatur erfährt:

$$N(z) = N_0 \times \begin{cases} \exp\left[\left(z + \frac{L}{2}\right)/s\right] & , \quad z < -\frac{L}{2} \\ 1 & , \quad -\frac{L}{2} < z < \frac{L}{2} \\ \exp\left[\left(\frac{L}{2} - z\right)/s\right] & , \quad z > \frac{L}{2} \end{cases} \tag{A.4}$$

L ist die Länge der Zelle und s ein Faktor, der die Steilheit der Exponentialfunktion bestimmt[1]. Die Mitte der Zelle wurde hierbei ohne Verlust der Allgemeinheit auf $z = 0$ gesetzt. Die Form dieses Dichteverlaufs, die bereits in Abbildung 7.2 aus Kapitel 7.3 graphisch veranschaulicht wurde, wurde hier als unabhängig von der Temperatur angenommen. Gäbe es eine bekannte Abhängigkeit der Form des Dichteverlaufs von der Temperatur des Quecksilberdampfes, so könnte auch diese noch mit in die Rechnungen einbezogen werden.
Die Integrale über z und z'' können nun in die entsprechenden Bereiche zerlegt werden und $G^{(3)}$ dann in eine Form gebracht werden, die mit Mathematica ohne größeren Aufwand numerisch berechnet werden kann.
Beim Zerlegen des Integrals über $\hat{k}_4(z'')$ wird noch berücksichtigt, dass die Beobachtungsebene weit außerhalb der Erzeugungsregion liegt, wodurch man die obere Integrationsgrenze z' ins Unendliche legen kann. Weil diese Exponentialfunktion im Absolutbetrag steht, liefert ihr Imaginärteil einen Beitrag von 1 und kann somit vernachlässigt werden. Gleichung A.1 wird damit zu

[1] Ist beispielsweise $s = 10L$, so ist die Dichte nach dem zehnfachen der Zellenlänge auf $1/e$ abgefallen.

$$
\begin{aligned}
G^{(3)} = {} & (b_1 \Delta k_0)^2 \, 16 k_4 \left(\prod_{j=1}^{3} \frac{1}{b_j} \right) \int_0^\infty r' \\
& \times \left| \exp \left[-\frac{\alpha_{4,0}}{2} \left(\int_{-\infty}^{-\frac{L}{2}} \left(\exp \left[\left(z'' + \tfrac{L}{2} \right) / s \right] \right)^2 dz'' + \int_{-\frac{L}{2}}^{\frac{L}{2}} dz'' + \int_{\frac{L}{2}}^{\infty} \left(\exp \left[\left(\tfrac{L}{2} - z'' \right) / s \right] \right)^2 dz'' \right) \right] \right. \\
& \quad \times \left(\int_{-\infty}^{-\frac{L}{2}} \frac{\exp \left[\left(z + \frac{L}{2} \right) / s \right]}{a(z, z')} \exp \left[-r'^2 q(z, z') \right] \right. \\
& \qquad \left. \times \exp \left[-i \int_{-\infty}^{z} \Delta k_0 \exp \left[\left(z'' + \tfrac{L}{2} \right) / s \right] + i \frac{\Delta \alpha_0}{2} \left(\exp \left[\left(z'' + \tfrac{L}{2} \right) / s \right] \right)^2 dz'' \right] dz \right. \\
& \quad + \int_{-\frac{L}{2}}^{\frac{L}{2}} \frac{1}{a(z, z')} \exp \left[-r'^2 q(z, z') \right] \\
& \qquad \times \exp \left[-i \left(\int_{-\infty}^{-\frac{L}{2}} \Delta k_0 \exp \left[\left(z'' + \tfrac{L}{2} \right) / s \right] + i \frac{\Delta \alpha_0}{2} \left(\exp \left[\left(z'' + \tfrac{L}{2} \right) / s \right] \right)^2 dz'' \right. \right. \\
& \qquad\quad \left. \left. + \int_{-\frac{L}{2}}^{z} \Delta k_0 + i \frac{\Delta \alpha_0}{2} dz'' \right) \right] dz \\
& \quad + \int_{\frac{L}{2}}^{\infty} \frac{\exp \left[\left(\frac{L}{2} - z \right) / s \right]}{a(z, z')} \exp \left[-r'^2 q(z, z') \right] \\
& \qquad \times \exp \left[-i \left(\int_{-\infty}^{-\frac{L}{2}} \Delta k_0 \exp \left[\left(z'' + \tfrac{L}{2} \right) / s \right] + i \frac{\Delta \alpha_0}{2} \left(\exp \left[\left(z'' + \tfrac{L}{2} \right) / s \right] \right)^2 dz'' \right. \right. \\
& \qquad\quad + \int_{-\frac{L}{2}}^{\frac{L}{2}} \Delta k_0 + i \frac{\Delta \alpha_0}{2} dz'' \\
& \qquad\quad \left. \left. \left. + \int_{\frac{L}{2}}^{z} \Delta k_0 \exp \left[\left(\tfrac{L}{2} - z'' \right) / s \right] + i \frac{\Delta \alpha_0}{2} \left(\exp \left[\left(\tfrac{L}{2} - z'' \right) / s \right] \right)^2 dz'' \right) \right] dz \right) \Bigg|^2 dr'
\end{aligned}
\tag{A.5}
$$

umgeformt. Mit dieser Dichteverteilung können nun, wie oben schon besprochen, die Integrale nach dz'' ausgeführt werden. Damit wird $G^{(3)}$ zu

$$
\begin{aligned}
G^{(3)} = {} & (b_1 \Delta k_0)^2 \, 16 k_4 \left(\prod_{j=1}^{3} \frac{1}{b_j} \right) \int_0^\infty r' \\
& \times \left| \exp\left[-\frac{\alpha_{4,0}}{2} \left(\tfrac{s}{2} + L + \tfrac{s}{2} \right) \right] \right. \\
& \quad \times \left(\int_{-\infty}^{-\frac{L}{2}} \frac{\exp\left[\left(z + \frac{L}{2} \right) / s \right]}{a(z, z')} \exp\left[-r'^2 q(z, z') \right] \right. \\
& \qquad \left. \times \exp\left[-i \left(\Delta k_0 s \exp\left[\left(z + \tfrac{L}{2} \right) / s \right] + i \frac{\Delta \alpha_0}{2} \left(\tfrac{s}{2} \exp\left[2 \left(z + \tfrac{L}{2} \right) / s \right] \right) \right) \right] dz \right. \\
& \quad + \int_{-\frac{L}{2}}^{\frac{L}{2}} \frac{1}{a(z, z')} \exp\left[-r'^2 q(z, z') \right] \\
& \qquad \times \exp\left[-i \left(\Delta k_0 \left(s + \left(z + \tfrac{L}{2} \right) \right) + i \frac{\Delta \alpha_0}{2} \left(\tfrac{s}{2} + \left(z + \tfrac{L}{2} \right) \right) \right) \right] dz \\
& \quad + \int_{\frac{L}{2}}^{\infty} \frac{\exp\left[\left(\frac{L}{2} - z \right) / s \right]}{a(z, z')} \exp\left[-r'^2 q(z, z') \right] \\
& \qquad \times \exp\left[-i \left(\Delta k_0 \left(s + L + s \left(1 - \exp\left[\left(\tfrac{L}{2} - z \right) / s \right] \right) \right) \right. \right. \\
& \qquad \left. \left. \left. + \; i \frac{\Delta \alpha_0}{2} \left(\tfrac{s}{2} + L + \tfrac{s}{2} \left(1 - \exp\left[2 \left(\tfrac{L}{2} - z \right) / s \right] \right) \right) \right) \right] dz \right) \Bigg|^2 dr' \, .
\end{aligned}
\tag{A.6}
$$

Für eine reine Quecksilberatmosphäre wird in dieser Form von $G^{(3)}$ sowohl die hier angenommene Dichteverteilung des Quecksilbers, als auch die Absorption bei den Verstimmungen unserer Laser korrekt berücksichtigt.
Nun befindet sich im Vier-Wellen-Mischaufbau aber keine reine Quecksilberatmosphäre, sondern es wird zusätzlich eine bestimmte Menge Helium als Puffergas eingelassen. Der Einfluss von Helium auf die Druckverbreiterung des $6^1\mathrm{S}$ – $6^3\mathrm{P}$-Übergangs wird hier vernachlässigt. Da der Absorptionskoeffizient aber aus der gemessenen Transmission unter Berücksichtigung der Dichteverteilung berechnet wird, hat diese Vernachlässigung überhaupt keinen Einfluss auf das Ergebnis der Rechnungen, wenn man sich in der Mitte der symmetrischen Dichteverteilung befindet.

Der Einfluss des Heliums auf die Dispersion und damit auf die Phasenfehlanpassung soll hier aber mit berücksichtigt werden. Wie in Kapitel 2.4 beschrieben, können die Beiträge zweier unterschiedlicher Gassorten zur gesamten Phasenfehlanpassung einfach aufsummiert werden. Somit ist $\Delta k = \Delta k_{\mathrm{Hg}} + \Delta k_{\mathrm{He}} = C_{\mathrm{Hg}} \times N_{\mathrm{Hg}} + C_{\mathrm{He}} \times N_{\mathrm{He}}$. Die Stärke des Einflusses eines festen Heliumdruckes auf die Fehlanpassung der Wellenvektoren hängt also einerseits von der Verstimmung des UV-Lasers zum $6^1\mathrm{S}$ – $6^3\mathrm{P}$-Übergang ab, für größere Verstimmungen wird C_{Hg} kleiner, und andererseits von der Dichte der Hg-Atome. Weil für die hier betrachtete Verstimmung des UV-Lasers von $-400\,\mathrm{GHz}$ der Einfluss des Heliums erst ab etwa 100 mbar Heliumdruck signifikant wird (siehe Abbildung 7.10) und mit Quecksilberdampfdrücken im einstelligen bis niedrigen zweistelligen Bereich gearbeitet wird, kann die Dichte von Helium in guter Näherung als konstant über z angenommen werden[2]. Somit kommt also zu der von der Dichte der Quecksilberatome abhängigen Phase, die in den komplexen Exponentialfunktionen mit fortschreitendem z akkumuliert wird, noch ein linear mit z anwachsender Anteil durch das Helium hinzu. Allerdings ist im Gegensatz zu Δk_{Hg} der Wert von Δk_{He} aber positiv (für die Berechnung von Δk_{He} siehe Anhang D), was insgesamt die Rotation der Phase in der komplexen Ebene verlangsamt. Nun kommt es für das Ergebnis der Berechnung der Phasenanpassungsfunktion $G^{(3)}$ nur auf die Änderung der gesamten Phase an, nicht aber auf ihren absoluten Wert. Deshalb kann der Einfluss von Helium berücksichtigt werden, indem in jedem der Exponenten ein zusätzlicher Term $-i\Delta k_{\mathrm{He}}\, z$

[2]Prinzipiell ließe sich aber unter der Annahme eines konstanten Gesamtdruckes über die ganze Apparatur eine Verteilung des Heliums in die Rechnung mit einbauen, die von der Quecksilberverteilung abhängt. Das würde hier die Rechnung jedoch nur unnötig weiter verkomplizieren.

mit eingeführt wird:

$$
\begin{aligned}
G^{(3)} = {} & \left(b_1 \Delta k_{0,\mathrm{Hg}}\right)^2 16 k_4 \left(\prod_{j=1}^{3} \frac{1}{b_j}\right) \int_0^\infty r' \\
& \times \left| \exp\left[-\frac{\alpha_{4,0}}{2}\left(\tfrac{s}{2} + L + \tfrac{s}{2}\right)\right] \right. \\
& \quad \times \left(\int_{-\infty}^{-\frac{L}{2}} \frac{\exp\left[\left(z + \frac{L}{2}\right)/s\right]}{a(z,z')} \exp\left[-r'^2 q(z,z')\right] \right. \\
& \qquad \times \exp\left[-i\left(\Delta k_{0,\mathrm{Hg}} s \exp\left[\left(z + \tfrac{L}{2}\right)/s\right] + \Delta k_{\mathrm{He}}\, z \right.\right. \\
& \qquad\quad \left.\left. + \, i\frac{\Delta\alpha_0}{2}\left(\tfrac{s}{2}\exp\left[2\left(z + \tfrac{L}{2}\right)/s\right]\right)\right)\right] dz \\
& \quad + \int_{-\frac{L}{2}}^{\frac{L}{2}} \frac{1}{a(z,z')} \exp\left[-r'^2 q(z,z')\right] \\
& \qquad \times \exp\left[-i\left(\Delta k_{0,\mathrm{Hg}}\left(s + \left(z + \tfrac{L}{2}\right)\right) + \Delta k_{\mathrm{He}}\, z \right.\right. \\
& \qquad\quad \left.\left. + \, i\frac{\Delta\alpha_0}{2}\left(\tfrac{s}{2} + \left(z + \tfrac{L}{2}\right)\right)\right)\right] dz \\
& \quad + \int_{\frac{L}{2}}^{\infty} \frac{\exp\left[\left(\frac{L}{2} - z\right)/s\right]}{a(z,z')} \exp\left[-r'^2 q(z,z')\right] \\
& \qquad \times \exp\left[-i\left(\Delta k_{0,\mathrm{Hg}}\left(s + L + s\left(1 - \exp\left[\left(\tfrac{L}{2} - z\right)/s\right]\right)\right) + \Delta k_{\mathrm{He}}\, z \right.\right. \\
& \qquad\quad \left.\left. + \, i\frac{\Delta\alpha_0}{2}\left(\tfrac{s}{2} + L + \tfrac{s}{2}\left(1 - \exp\left[2\left(\tfrac{L}{2} - z\right)/s\right]\right)\right)\right)\right] dz \Bigg) \Bigg|^2 dr' \,.
\end{aligned}
\tag{A.7}
$$

Diese Form von $G^{(3)}$ ist nun mit den Definitionen der mathematischen Symbole aus Kapitel 2.3 mit Mathematica ohne weiteres numerisch berechenbar. Der Quellcode eines dafür geschriebenen Mathematica-Programmes findet sich in Anhang D.
Als abschließende Bemerkungen sei noch daran erinnert, warum in der ersten Zeile dieses Ausdruckes von $G^{(3)}$ der Wert $\Delta k_{0,\mathrm{Hg}}$ und nicht etwa beispielsweise $\Delta k_{0,\mathrm{Hg}} + \Delta k_{\mathrm{He}}$ verwendet werden muss. Durch Einbeziehen von $\left(b_1 \Delta k_{0,\mathrm{Hg}}\right)^2$ in die Phasenanpassungs-

funktion sollte nämlich die Abhängigkeit der erzeugten Leistung von der Dichte des nichtlinearen Mediums, welche ihren Ursprung in $\chi^{(3)}$ hat, in die Phasenanpassungsfunktion hineingezogen werden. Auch die normierte Dichteverteilung, die jeweils am Anfang der Integrale über z steht, stammt noch aus dieser Proportionalität von $\chi^{(3)}$ zur Dichte des nichtlinearen Mediums und hängt somit eben nur von der Dichteverteilung der Quecksilberatome und nicht von der Dichteverteilung der Heliumatome ab.

Anhang B

Der Absorptionskoeffizient des UV-Laserstrahls

In diesem Anhang soll zuerst die Berechnung des Absorptionskoeffizienten des UV-Laserstrahls aus der gemessenen Transmission dieses Laserstrahls durch die Lyman-α-Apparatur vorgestellt werden. Dann folgt eine Begründung für die Normierung der Transmission bei einer Zellentemperatur von 155 °C auf 1. Am Ende dieses Anhangs wird der so berechnete Absorptionskoeffizient des UV-Laserstrahls mit Werten aus der Literatur verglichen.

B.1 Die Berechnung des Absorptionskoeffizienten

Das Verhältnis κ der transmittierten Leistung zur insgesamt eingestrahlten Leistung beim Durchgang von Licht durch eine bestimmte Dichteverteilung $N(z)$ absorbierender Atome hängt wie folgt mit dem Absorptionskoeffizienten $\alpha(z)$ zusammen:

$$\kappa = \exp\left[-\int \alpha(z)\,dz\right] \tag{B.1}$$

Der Absorptionskoeffizient ist wie in Kapitel 2.3 für unsere Situation, allerdings unter der Vernachlässigung der Druckverbreiterung durch Helium, proportional zum Quadrat der Dichte der absorbierenden Atome. Somit kann der Absorptionskoeffizient α_0 bei der maximalen Dichte N_0 aus dem Integral herausgezogen werden und stattdessen über das Quadrat der normierten Dichteverteilung $S(z)$ integriert werden.

$$\kappa = \exp\left[-\alpha_0 \int S(z)^2\,dz\right] \tag{B.2}$$

Löst man nun diese Gleichung nach dem Absorptionskoeffizienten α_0 auf, so kann dieser für eine bestimmte Dichteverteilung aus der normierten Transmission κ berechnet werden.

$$\alpha_0 = -\ln(\kappa) \Big/ \int S(z)^2\,dz \tag{B.3}$$

B.2 Die Normierung der Transmission

In Kapitel 7.3 wird die Transmission des UV-Laserstrahls durch die Lyman-α-Erzeugungsapparatur bei einer gemessenen Temperatur von 155 °C auf 1 normiert. Der entsprechende Plot der normierten Transmission ist in Abbildung 7.3 zu sehen. In diesem Graphen erkennt man, dass die Transmission von 155 °C bis 230 °C auf etwa 81 % des Ausgangswerts gefallen ist. Ohne den Einfluss von Helium ist der Absorptionskoeffizient proportional zum Quadrat der Dichte der Quecksilberatome. Der konstante Heliumdruck dämpft dieses Verhältnis etwas ab. Allerdings muss der Absorptionskoeffizient immer mindestens linear mit der Dichte der absorbierenden Atome steigen, selbst wenn diese überhaupt keine Eigendruckverbreiterung zu der Breite der Absorptionslinie beitragen. Die Dichte der Heliumatome nimmt von 155 °C auf 230 °C um einen Faktor 11 zu (siehe Anhang C.3). Damit erhält man unter der Annahme einer gleichbleibenden normierten Dichteverteilung nach Gleichung B.2 die folgenden beiden Gleichungen:

$$\begin{aligned} \kappa(155°\mathrm{C}) &= \exp\left[-\alpha_0 \int S(z)^2\, dz\right] \\ 0{,}81 \times \kappa(155°\mathrm{C}) &= \exp\left[-11\alpha_0 \int S(z)^2\, dz\right] \end{aligned} \tag{B.4}$$

Löst man diese beiden Gleichungen nach κ auf, findet man, dass für einen linearen Zusammenhang des Absorptionskoeffizienten mit der Dichte die normierte Transmission des UV-Laserstrahls bei 155 °C einen Wert von 98 % hatte. Geht man davon aus, dass Helium die Eigendruckverbreiterung des Quecksilbers nicht komplett überwiegt, so liegt dieser Wert noch höher.
In Kapitel 6.3 wurde diskutiert, dass die gemessenen Temperaturen der Quecksilberdampfzelle eigentlich niedrigeren Temperaturen des Quecksilberdampfes entsprechen, die zudem noch temperaturabhängig verschoben sind. Mit dieser Annahme kommt man hier jedoch zu einem ähnlichen Ergebnis.
Für die Rechnungen in Kapitel 7 macht es keinen signifikanten Unterschied, ob die Transmission bei 155 °C auf 0,98 oder auf 1 normiert wird, weswegen die Normierung auf 1 gerechtfertigt ist.

B.3 Vergleich des Absorptionskoeffizienten mit Werten aus der Literatur

Sowohl die Messungen von [Kac80], als auch die Messungen von [PLL75] ergeben für rotverstimmte Laser zur $6^1\mathrm{S} - 6^3\mathrm{P}$-Resonanz in Quecksilber, bei einer reinen Quecksilberatmosphäre, einen Absorptionskoeffizienten α, der proportional zum Quadrat der Dichte der Quecksilberatome N ist. Für eine Verstimmung von $-400\,\mathrm{GHz}$ geben beide einen Wert von $\alpha/N^2 = 1{,}12 \times 10^{-36}\,\mathrm{cm}^5$ an. Dieser Wert soll nun mit der hier

durchgeführten Absorptionsmessung verglichen werden. Zunächst soll dabei auch für unser Gemisch aus Quecksilber und Helium angenommen werden, dass der Absorptionskoeffizient proportional zu der Dichte der Quecksilberatome ist. Mit dem normierten Dichteprofil aus Abbildung 7.2 und $s = 1{,}21\,\mathrm{cm}$ wird dann der Absorptionskoeffizient in Abhängigkeit von der Temperatur ausgerechnet. Nimmt man weiter für die Berechnung der Dichte des Quecksilberdampfes an, dass die gemessene Temperatur der Zelle um $\Delta T = 39\,^{\circ}\mathrm{C}$ höher liegt als die Temperatur des Quecksilberdampfes (Kapitel 7.4), erhält man bei der Berechnung des Wertes von α/N^2 für $T = 230\,^{\circ}\mathrm{C}$ eben genau den Wert aus der Literatur. Dieser Wert ist stabil gegenüber der gewählten Normierung der UV-Transmission κ.

Anhang C

Zusammenstellung aller benötigten Quecksilberdaten

Hier finden sich alle Quecksilberdaten, die für die Rechnungen in dieser Arbeit benötigt werden, sowie die zugehörigen Quellangaben.

C.1 Übergangsfrequenzen, Oszillatorstärken und relative Vorzeichen der Dipolmatrixelementprodukte

Für die Berechnung der Phasenfehlanpassung (Kapitel 2.4) und der partiellen Suszeptibilitäten (Kapitel 2.5.1) werden Übergangswinkelfrequenzen vom Grundzustand 6^1S beziehungsweise vom 7^1S-Niveau in Energieniveaus benötigt, die von dort über Ein-Photon-Übergänge erreichbar sind. Relevant sind dabei alle Niveaus, die zwischen dem Grundzustand und dem 13^1P-Niveau liegen, sowie das erste autionisierende Niveau $(^2\mathrm{D}_{3/2})6\mathrm{p}'\,^1\mathrm{P}$ [AS87, SA86]. Ihre Energien sind [Moo71] entnommen und in Tabelle C.1 in der Einheit cm^{-1} dargestellt. Zur Berechnung der Übergangswinkelfrequenzen zwischen zwei Niveaus ist die Differenz der entsprechenden Werte aus der Tabelle zu bilden und das Ergebnis mit dem Faktor $2\pi c$ zu multiplizieren, wobei c in cm/s genommen werden muss.
Des Weiteren braucht man die Oszillatorstärken der Übergänge und bei der Berechnung der partiellen Suszeptibilitäten die relativen Vorzeichen der Produkte der Dipolmatrixelemente. Beide sind in [AS87] zu finden und wurden in Tabelle C.1 übernommen. Die hier gegebenen Energieniveaus sind Schwerpunktwerte der Struktur, die von den Isotopen und den Hyperfeinaufspaltungen erzeugt wird.
Um die Isotopieverschiebungen und die Hyperfeinstruktur des 6^1S – 6^3P-Übergangs und des 6^1S – 7^1S-Zwei-Photonen-Übergangs, welche im folgenden Abschnitt gegeben werden, korrekt mit in die Rechnungen einbeziehen zu können, und für das tägliche Einstellen der Wellenlängen der Laser mit Hilfe eines genauen Wavemeters, benötigt

Tabelle C.1: Energieniveaus, Oszillatorstärken und relative Vorzeichen der Dipolmatrixelementprodukte von Quecksilber.

Zustand	Energie [cm^{-1}]	$f_{6^1\mathrm{S}-n^{2S+1}\mathrm{P}}$	$f_{7^1\mathrm{S}-n^{2S+1}\mathrm{P}}$	Vorzeichen
6^1S	0			
6^3P	39412,300	0,024	0,0022	−
6^1P	54068,781	1,15	0,15	−
7^1S	63928,243			
7^3P	69661,89	$< 10^{-5}$	0,11	+
7^1P	71295,15	0,020	1,24	+
8^3P	76467,067	0,0014	$1{,}2 \times 10^{-4}$	+
8^1P	76863,264	0,010	0,029	−
$(^2\mathrm{D}_{5/2})6\mathrm{p}'\,^1$P	78813	0,15	0,018	+
9^3P	79412,745	0,0055	$5{,}0 \times 10^{-5}$	−
9^1P	79964,1	0,070	0,029	+
10^3P	80916,686	0,0018	$2{,}6 \times 10^{-7}$	+
10^1P	81153,614	0,0155	0,0097	+
11^3P	81811,876	0,0011	$1{,}6 \times 10^{-6}$	+
11^1P	81942,444	0,0050	0,0050	+
12^3P	82379,0	0,0008	$7{,}5 \times 10^{-6}$	+
12^1P	82464,05	0,0023	0,0025	+
13^3P	82765,9	0,0005	$1{,}7 \times 10^{-5}$	+
13^1P	82823,94	0,0011	0,0015	+
$(^2\mathrm{D}_{3/2})6\mathrm{p}'\,^1$P	88760	0,53	0,061	+

man die entsprechenden Energieniveaus eines Quecksilberisotops:
Beim ^{202}Hg-Isotop hat der 6^3P-Zustand eine Energie von 39412,122 cm^{-1} und der 7^1S-Zustand eine Energie von 63928,057 cm^{-1} [GLV77].

C.2 Hyperfeinstruktur- und Isotopieverschiebungen, sowie Häufigkeit der Quecksilberisotope

Bei der Berechnung der Phasenfehlanpassung, der partiellen Suszeptibilitäten und bei der Berechnung von $|S(\omega_1 + \omega_2)|^2$ gehen die Hyperfeinstruktur- und Isotopieverschiebungen[1] und damit auch die Häufigkeiten der einzelnen Quecksilberisotope ein. Quecksilber natürlichen Isotopengemischs enthält sieben stabile Isotope, von denen die ungeraden zusätzlich eine Hyperfeinstruktur bei den Zuständen mit $J \neq 0$ aufweisen. Das

[1] sofern vorhanden

Isotop ^{196}Hg kommt nur zu 0,15344 (19) % vor und wird deshalb in allen Rechnungen vernachlässigt.
Die folgende Tabelle C.2 zeigt eine Zusammenstellung der benötigten Werte. Die Häufigkeit der Quecksilberisotope ist [ZSB89] entnommen. Die Isotopieverschiebungen und die Hyperfeinaufspaltung des 6^1S – 6^3P-Übergangs stammen aus [Sch63]. Die Isotopieverschiebungen des 6^1S – 7^1S-Zwei-Photonen-Übergangs werden dagegen aus der absoluten Verschiebung des ^{200}Hg zum ^{202}Hg-Isotops [GLV77] und den relativen Isotopieverschiebungen gegenüber dieser Verschiebung [GV75] berechnet[2].

Tabelle C.2: Hyperfeinstruktur- und Isotopieverschiebungen, sowie Häufigkeit der Quecksilberisotope. *HFK: Hyperfeinkomponente gekennzeichnet durch den Gesamtdrehimpuls F im 6^3P-Niveau; g = 2F + 1: Entartungsfaktor. Die in Klammern angegebenen Fehler entstammen entweder direkt der angegebenen Quelle (Häufigkeit) oder wurden mittels Fehlerfortpflanzung errechnet.*

Isotop	Häufigkeit [%]	$\Delta_{6^1S-7^1S}$ [cm^{-1}]	HFK	g	$\Delta_{6^1S-6^3P}$ [cm^{-1}]
^{198}Hg	9,968(13)	0,2773(5)			0,33696(15)
^{199}Hg	16,873(17)	0,2599(5)	F = 1/2	2	-0,17703(58)
			F = 3/2	4	0,56136(38)
^{200}Hg	23,096(26)	0,1455(2)			0,17667(30)
^{201}Hg	13,181(13)	0,1016(4)	F = 1/2	2	0,56619(66)
			F = 3/2	4	0,31440(24)
			F = 5/2	6	-0,15200(48)
^{202}Hg	29,863(33)	0			0
^{204}Hg	6,865(7)	-0,1430(5)			-0,17381(58)

C.3 Temperaturabhängigkeit der Quecksilberdampfdichte

Sowohl zur Berechnung der Phasenfehlanpassung, als auch bei der Berechnung von $|S(\omega_1 + \omega_2)|^2$, benötigt man die Dichte von Quecksilber in Abhängigkeit von der Temperatur der Quecksilberdampfzelle. Eine Tabelle des Dampfdruckes von Quecksilber in Abhängigkeit von der Temperatur findet sich in [WAW97] und ist hier in Tabelle C.3 wiedergegeben. An diese Daten kann mit Mathematica eine Funktion angefittet werden und so Werte zu beliebigen Drücken berechnet werden. Diese Funktion ist in

[2] Auch für den 6^1S – 6^3P-Übergang können mit [GV75], [GLV77] und [Koh61] die entsprechenden Werte berechnet werden (→ [Koh61] wird aufgrund eines nicht gelisteten Wertes in [GLV77]benötigt.). Sie haben ähnliche Fehler wie die Werte in [Sch63] und stimmen mit diesen Werten innerhalb der Fehlergrenzen überein.

Tabelle C.3: Dampfdruck von Quecksilber in Abhängigkeit von der Temperatur.

T [°C]	p [mbar]	T [°C]	p [mbar]
-40	$2{,}39 \times 10^{-6}$	140	2,43
$-38{,}87$	$2{,}77 \times 10^{-6}$	160	5,50
-30	$8{,}94 \times 10^{-6}$	180	$1{,}16 \times 10^{1}$
-20	$2{,}93 \times 10^{-5}$	200	$2{,}28 \times 10^{1}$
-10	$8{,}98 \times 10^{-5}$	220	$4{,}16 \times 10^{1}$
0	$2{,}53 \times 10^{-4}$	240	$7{,}54 \times 10^{1}$
10	$6{,}63 \times 10^{-4}$	260	$1{,}28 \times 10^{2}$
20	$1{,}63 \times 10^{-3}$	280	$2{,}09 \times 10^{2}$
40	$8{,}16 \times 10^{-3}$	300	$3{,}29 \times 10^{2}$
60	$3{,}37 \times 10^{-2}$	320	$5{,}02 \times 10^{2}$
80	$1{,}18 \times 10^{-1}$	340	$7{,}44 \times 10^{2}$
100	$3{,}62 \times 10^{-1}$	350	$8{,}96 \times 10^{2}$
120	$9{,}84 \times 10^{-1}$	356,58	$1{,}01325 \times 10^{3}$

Abbildung C.1 a dargestellt. Mit der Zustandsgleichung des idealen Gases, die bei unseren Drücken und Temperaturen näherungsweise gültig ist, kann hieraus die Dichte N von Quecksilber in Abhängigkeit von der Temperatur berechnet werden, wie in der folgenden Gleichung C.1 ausgeführt.

$$N = \frac{p[\text{mbar}]}{k_B(T[^\circ\text{C}] + 273{,}15)} \times 10^{-4} \tag{C.1}$$

Die Gleichung ist so gestaltet, dass der Druck in mbar eingesetzt werden kann und die Dichte in cm^{-3} in Abhängigkeit von der Temperatur in °C berechnet wird (Abbildung C.1 b).

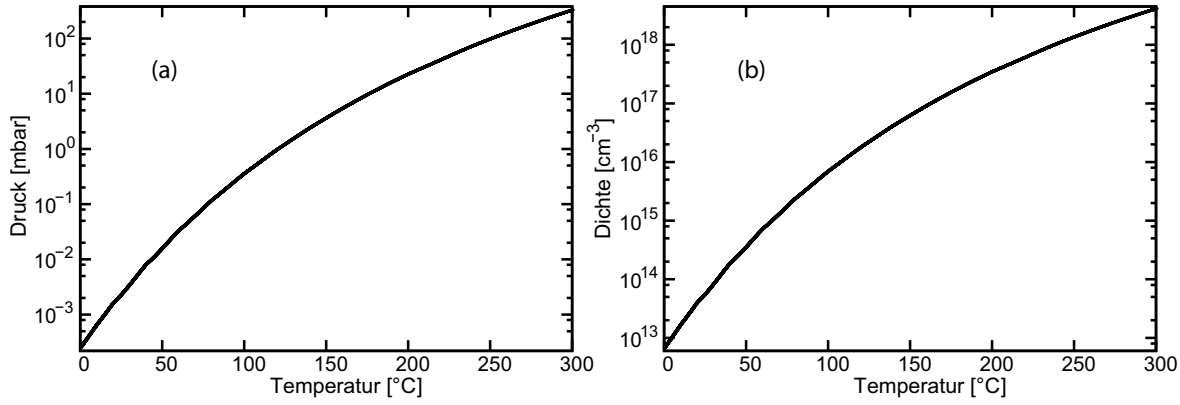

Abbildung C.1: (a) Druck und (b) Dichte von Quecksilber in Abhängigkeit von der Temperatur.

C.4 Verbreiterung des $6^1S - 6^3P$-Übergangs

Für Verstimmungen $< 45\,\mathrm{GHz}$ zur Linienmitte kann, wie in Kapitel 2.4 geschehen, die Druckverbreiterung durch ein Lorentzprofil beschrieben werden [PLL75]. Perrin-Lagarde und Lennuier geben die natürliche Linienbreite $\Delta\nu_N$ zu 1,35 MHz an und veröffentlichen eine Tabelle, in der sie das Verhältnis der Druckverbreiterung $\Delta\nu_C$ zur natürlichen Linienbreite in Abhängigkeit von Temperatur und Teilchendichte gemessen haben (Tabelle C.4). Daraus leiten sie den folgenden Zusammenhang zwischen der

Tabelle C.4: Verhältnis der Druckverbreiterung zur natürlichen Linienbreite.

T [K]	$N \times 10^{-17}$ [cm^{-3}]	$\frac{\Delta\nu_C}{\Delta\nu_N}$	$\frac{1}{N}\frac{\Delta\nu_C}{\Delta\nu_N} \times 10^{16}$ [cm^3]
390	0,16	10	6,5
398	0,23	20	8,7
406	0,30	25	8,3
409	0,36	28	7,8
413	0,43	35	8,1
418	0,52	45	8,7
421	0,59	48	8,1
423	0,64	50	7,8
428	0,77	60	7,8
460	2,35	195	8,5
500	7,61	600	7,9
508	9,4	750	8,0
531	16,6	1320	8,0

Druckverbreiterung und der natürlichen Linienbreite ab:

$$\Delta\nu_C = (8{,}1 \pm 0{,}4) \times 10^{-16}\mathrm{cm}^3 \times N\Delta\nu_N \tag{C.2}$$

Mit diesem Zusammenhang lässt sich nun der Anteil der Druckverbreiterung einer Spektrallinie über der Temperatur graphisch darstellen (Abbildung C.2).
Zusätzlich zur Druckverbreiterung erfährt eine Spektrallinie noch eine Verbreiterung durch die Geschwindigkeit der Atome, die sogenannte Dopplerverbreiterung. Betrachtet man nur die Dopplerverbreiterung für sich, so führt diese zu einer gaußförmig verbreiterten Spektrallinie mit der Linienbreite [Dem07]

$$\Delta\nu_D = 2\sqrt{\ln 2}\,\nu_0 v_w/c\,. \tag{C.3}$$

Auch dieser Anteil der Linienverbreiterung ist in Abbildung C.2 dargestellt.
Durch Faltung des Lorentzprofils mit dem Dopplerprofil erhält man dann ein Voigtprofil, welches beide Verbreiterungsmechanismen berücksichtigt (Kapitel 2.4). Dessen

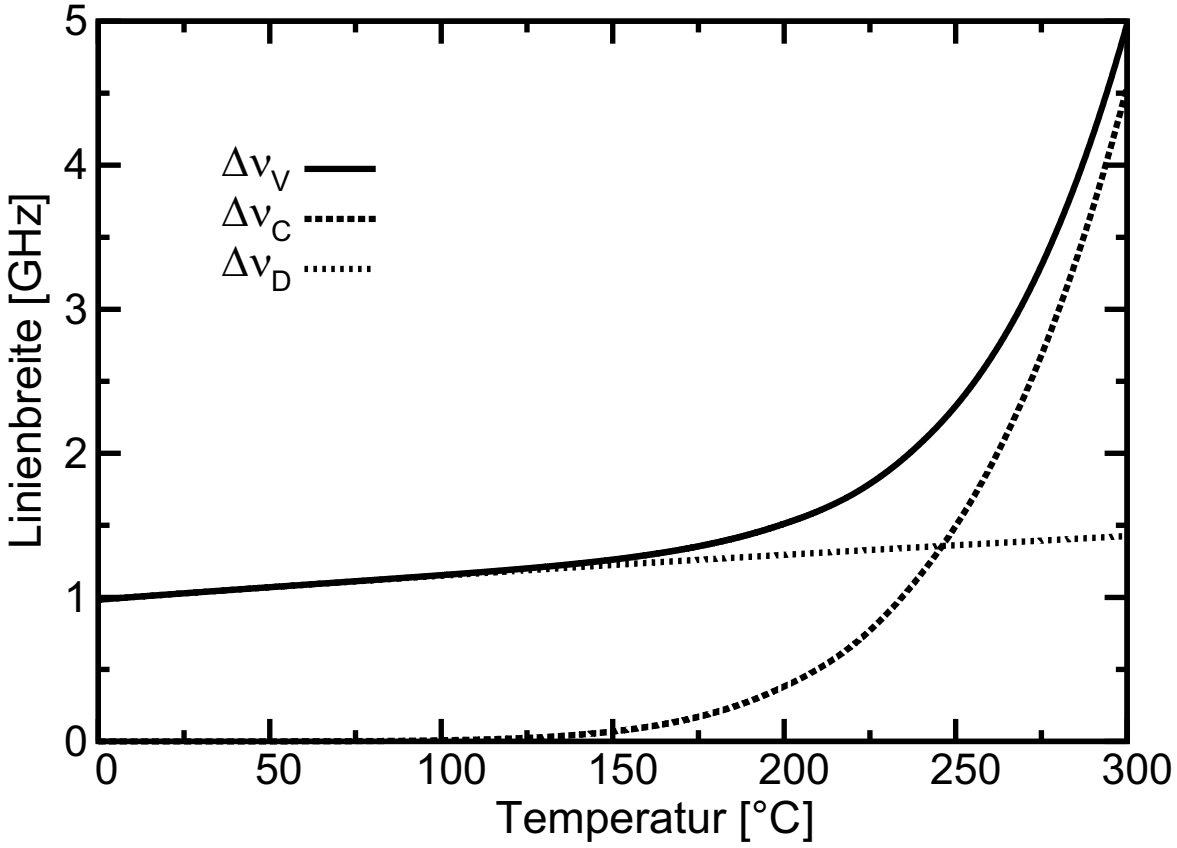

Abbildung C.2: Volle Linienbreite des 6^1S – 6^3P-Übergangs im Quecksilber in Abhängigkeit von der Temperatur des Quecksilberdampfes. Einmal nur unter Berücksichtigung der Dopplerverbreiterung ν_D (Breite des Dopplerprofils), einmal nur unter Berücksichtigung der Stoßverbreiterung ν_C (Breite des Lorentzprofils), und einmal unter Berücksichtigung von Doppler- und Stoßverbreiterung zugleich ν_V (Breite des Voigtprofils).

Breite kann numerisch mit einem Näherungsfehler von $< 0{,}02\,\%$ zu

$$\Delta\nu_V = \frac{1}{2}\left[1{,}0692\Delta\nu_C + \sqrt{0{,}86639\Delta\nu_C^2 + 4\Delta\nu_D^2}\right] \tag{C.4}$$

berechnet werden [OL77]. Vergleicht man nun die Breiten der unterschiedlichen Anteile an der Linienbreite mit der gesamten Linienbreite in Abbildung C.2 so wird deutlich, dass die Druckverbreiterung für Temperaturen unter 150 °C noch keine signifikante Rolle spielt, zu höheren Temperaturen aber eine zunehmend dominante Rolle einnimmt. Bei den Quecksilbertemperaturen, die in dieser Arbeit verwendet wurden, tragen beide Verbreiterungsmechanismen zur Linienbreite bei. Es gilt jedoch noch zu beachten, dass die lorentzförmige Druckverbreiterung gegenüber der gaußförmigen Dopplerverbreiterung in den weiten Flanken der Spektrallinien eine stärkere Bedeutung als bei der Vergrößerung der Linienbreite zukommt. Auch sollte nicht vergessen werden, dass die Betrachtung aus diesem Kapitel streng genommen nur für eine reine Quecksilberatmosphäre gilt und bei niedrigen Quecksilberdampfdrücken die Druckverbreiterung durch das Puffergas Helium auch noch eine wichtige Rolle spielt.

Obwohl bei den in dieser Arbeit durchgeführten Messungen die natürlichen Linienbreiten der Niveaus komplett von Druck- und Dopplerverbreiterung dominiert werden, seien hier noch die Lebensdauern des 6^3P-Niveaus von 122(2) ns und des 7^1S-Niveaus von 32,1(16) ns angegeben [BL89].

Anhang D

Mathematica-Quellcodes

In diesem Teil des Anhangs finden sich die Mathematica-Quellcodes, die für die in Kapitel 7 präsentierte Rechnung geschrieben wurden. Zunächst ist das komplette Programm für ein kastenförmiges Dichteprofil des Quecksilberdampfes mit exponentiellem Abfall am Rand dargestellt. Dieses kann komplett so, wie es hier dargestellt ist in ein Mathematica-Notebook übernommen und im Ganzen ausgeführt werden. Im Anschluss folgt dann noch die Berechnung der Phasenanpassungsfunktion $G^{(3)}$ für ein lorentzförmiges Dichteprofil.
In dieser Arbeit wurde die Version Mathematica 6.0 verwendet.

```
(* Freigabe aller Variablen *)
Remove["Global`*"]
```

Einlesen der gemessenen Daten und Plot der gemessenen Phasenanpassungskurve

```
(* Daten einlesen *)
SetDirectory["W:\Daten\Lyman_alpha"];
data = Import["messung33_500mu_sens.dat", "Table"];


(* Tabelle der Messdaten: {Temperatur in °C, Lyman-α-Counts/s *)
DataLya = Table[{data[[i, 10]], data[[i, 8]]}, {i, 2990, 3822}];


(* Datenpunkte mit weniger als 20 Counts/s rausnehmen *)
DataLyafürPlot = Table[{DataLya[[i, 1]], DataLya[[i, 2]]}, {i, 1, Length[DataLya]}];
r = 1;
For[i = 1, i <= Length[DataLya], i++,
  If[DataLya[[i, 2]] < 20, DataLyafürPlot = Delete[DataLyafürPlot, r], r = r + 1]];


(* Daten plotten *)
Datenplot = ListPlot[DataLyafürPlot, PlotStyle → PointSize[0.01]];
```

Konstanten und in unterschiedlichen Teilen des Programms verwendete Werte und Gleichungen

```
ΔT = 39; (* Temperatur um die die Rechnung zur gemessenen Temperatur der
 Dampfzelle verschoben wird *)
c = 2.99792458 * 10^(10); (* Lichtgeschwindigkeit in cm/s *)
k = 1.3807 * 10^(-23); (* Boltzmann-Konstante *)
h = 6.6261 * 10^(-34); (* Planck-Konstante *)
qe = 4.803 * 10^(-10); (* Elementarladung in cgs nach [Boy03] *)
me = 9.109 * 10^(-28); (* Ruhemasse Elektron in g *)
m = 202 / (6.02214179 * 10^(26)); (* Masse des 202Hg-Isotops in kg *)
vw[T_] := 100 Sqrt[2 * k * (T + 273.15) / m];
(* wahrscheinlichste Geschwindigkeit eines Atoms *)


γ6P = (1 / (1.22 * 10^(-7)) + 2 π 0.89 * 10^9) / 2;
(* halbe hom. Linienbreite in Winkelfrequenz =
 halbe (nat. Linienbreite + Druckverbreiterung) *)


(* Energien der Laser und des 7S-Zustandes in Quecksilber in cm^-1 *)
omega7S = 63928.243;
omega1 = 39398.779 ; (* 39398.779 = -400GHz Verstimmung zur 202Hg-Resonanz *)
omega2 = omega7S - omega1; (* Erfüllung der Zwei-Photonen-Resonanz-Bedingung *)
omega4 = 82259.285001249; (* Lyman-α *)
omega3 = omega4 - omega7S;


(* Die daraus resultierenden Wellenvektoren im Vakuum *)
k1 = 2 π omega1;
k2 = 2 π omega2;
k3 = 2 π omega3;
k4 = 2 π omega4;


(* Hyperfeinstruktur und Isotopieverschiebungen des 6^1S - 6^3P -
 Übergangs zum 202Hg-Isotop in cm^-1*)
Δ6S6P198 = 0.33696;
Δ6S6P199F1 = -0.17703;
Δ6S6P199F3 = 0.56136;
Δ6S6P200 = 0.17667;
Δ6S6P201F1 = 0.56619;
Δ6S6P201F3 = 0.31440;
Δ6S6P201F5 = -0.15200;
Δ6S6P202 = 0;
Δ6S6P204 = -0.17381;


(* Häufigkeiten der unterschiedlichen Quecksilberisotope *)
H198 = 0.09968;
H199 = 0.16873;
H200 = 0.23096;
H201 = 0.13181;
H202 = 0.29863;
H204 = 0.06865;
```

```
(* Gewichtungsfaktor G *)
G198 = H198;
G199F1 = H199 * 2 / 6;
G199F3 = H199 * 4 / 6;
G200 = H200;
G201F1 = H201 * 2 / 12;
G201F3 = H201 * 4 / 12;
G201F5 = H201 * 6 / 12;
G202 = H202;
G204 = H204;


(* Tabelle der Gewichtungsfaktoren,
die mit den untenstehenden Oszillatorstärken multipliziert werden können *)
G6SnP = {G198, G199F1, G199F3, G200, G201F1, G201F3, G201F5, G202, G204, 1, 1,
   1, 1, 1, 1, 1, 1, 1, 1, 1, 1, 1, 1, 1, 1, 1, 1};


(* Oszillatorstärken der Einphotonenübergänge vom Grundzustand,
wobei der 6^1S-6^3P - Übergang neunmal drin steht,
um die Gewichtungsfaktoren mit einrechnen zu können *)
f6SnP = { 0.024, 0.024, 0.024, 0.024, 0.024, 0.024, 0.024, 0.024, 0.024, 1.15,
   0.00001,  0.02,  0.0014, 0.01,  0.15, 0.0055,  0.07,  0.0018,  0.0155,  0.0011,
   0.005,  0.0008,  0.0023,
0.0005, 0.0011,  0.53};


(* Energieniveaus der Einphotonenübergänge vom Grundzustand in cm^-1 mit
  Aufspaltung des 6^1S-6^3P - Übergangs in Isotope und Hyperfeinstruktur *)
EnP = { 39 412.122 + Δ6S6P198,  39 412.122 + Δ6S6P199F1,  39 412.122 + Δ6S6P199F3,
   39 412.122 + Δ6S6P200,  39 412.122 + Δ6S6P201F1,  39 412.122 + Δ6S6P201F3,
   39 412.122 + Δ6S6P201F5,  39 412.122 + Δ6S6P202,  39 412.122 + Δ6S6P204,
   54 068.781,  69 661.89, 71 295.15, 76 467.067, 76 863.264,  78 813,  79 412.745,
   79 964.1,  80 916.686, 81 153.614,  81 811.876, 81 942.444,  82 379, 82 464.05,
   82 765.9, 82 823.94,  88 760};


(* Umrechnung der Energieniveaus in Übergangs-Winkelfrequenzen *)
ωnP = Table[EnP[[i]] * 2 π c , {i, 1, Length[EnP]}];


(*eindimensionale Maxwell-Boltzmann-Verteilung*)
vverteilung = Exp[-(vz / vw[230])^2] / (Sqrt[π] * vw[230]);
```

Berechnung der Phasenfehlanpassung pro Atomdichte von Quecksilber

```
(* es wird ein homogener Dämpfungsterm und die Dopplerbreite mit eingerechnet *)
Fktn1 = 2 π qe^2 / me * vverteilung *
   Re[Sum[f6SnP[[i]] * G6SnP[[i]] / (ωnP[[i]] ^2 - (ω (1 + vz / c) - I γ6P) ^2),
{i, 1, 26}]];


(* Brech = (n'- 1)/N in cm^-3 *)
Brech = Evaluate[NIntegrate[Fktn1, {vz, -80 000, 0, 80 000}, MaxRecursion → 10]];


(* Wellenvektor pro Atomdichte allgemein *)
CkNHg = 2 * Pi * Brech * ω / (2 π c) ;

(* Wellenvektor pro Atomdichte für die unterschiedlichen Wellenlängen *)
ω = 2 π c omega1; (* Berechnung der Winkelfrequenz des UV-Lasers *)
Ck1NHg = CkNHg;

ω = 2 π c omega2;
Ck2NHg = CkNHg;

ω = 2 π c omega3;
Ck3NHg = CkNHg;

ω = 2 π c omega4;
Ck4NHg = CkNHg;

(* Phasenfehlanpassung pro Atomdichte C für Hg *)
CΔkNHg = Ck4NHg - (Ck1NHg + Ck2NHg + Ck3NHg);
```

Berechnung der Quecksilberdichte in Abhängigkeit von der Temperatur

```
(* Druck in mbar in Abhängigkeit von der Temperatur in °C *)
pliste = {{-40, 2.39*10^(-6)}, {-38.87, 2.77*10^(-6)},
{-30, 8.94*10^(-6)}, {-20, 2.93*10^(-5)}, {-10, 8.98*10^(-5)},
{0, 2.53*10^(-4)}, {10, 6.63*10^(-4)}, {20, 1.63*10^-3},
{40, 8.16*10^-3}, {60, 3.37*10^-2}, {80, 1.18*10^-1}, {100, 3.62*10^-1},
   {120, 9.84*10^-1}, {140, 2.43}, {160, 5.5}, {180, 1.16*10}, {200, 2.28*10},
   {220, 41.6}, {240, 75.4}, {260, 1.28*10^2}, {280, 2.09*10^2},
   {300, 3.29*10^2}, {320, 5.02*10^2},
{340, 7.44*10^2}, {350, 8.96*10^2}};


(* Interpolation der obigen Liste *)
pvonT = Interpolation[pliste] ;


(* Hg-Dichte in cm^-3 in Abhängigkeit von der Temperatur in °C *)
NHg[T_] := pvonT[T] * 0.0001 / (k * (T + 273.15))
```

Berechnung der Phasenfehlanpassung für Quecksilber

```
ΔkHg[T_] := NHg[T] * CΔkNHg
```

Berechnung der Phasenfehlanpassung für Helium

```
(* Dipolpolarisierbarkeit nach [MS03]:
  erster Eintrag: Frequenz in Hatree: E_Hatree/h = 219474.63cm^-1;
zweiter Eintrag: dynamische Dipol-Polarisierbarkeit in a_0^3,
Bohrscher Atomradius a_0 = 0.52917721086*10^-8cm *)
PolListe = {{0, 1.38317394}, {0.05, 1.387094}, {0.1, 1.398857}, {0.15, 1.418998},
   {0.2, 1.448388}, {0.25, 1.488389}, {0.3, 1.541045}, {0.35, 1.609399},
   {0.4, 1.698070}, {0.45, 1.814308}, {0.5, 1.970129}, {0.55, 2.187047}};


(* Umrechnung Hatree in cm^-1 und a_0^3 in cm^3 *)
PolListecgs =
  Table[{PolListe[[i, 1]] * 219474.63, PolListe[[i, 2]] * (0.52917721086 * 10^(-8))^3},
   {i, 1, Length[PolListe]}];


(* Interpolation der obigen Liste *)
Pol = Interpolation[PolListecgs];


(* Brech = (n'- 1)/N in cm^-3 nach [SA86] *)
BrechHe = 2 * Pi * Pol[ωHe];


(* Wellenvektor pro Atomdichte allgemein *)
CkNHe = 2 * Pi * BrechHe * ωHe;

(* Wellenvektor pro Atomdichte für die unterschiedlichen Wellenlängen *)
ωHe = omega1;
Ck1NHe = CkNHe;

ωHe = omega2;
Ck2NHe = CkNHe;

ωHe = omega3;
Ck3NHe = CkNHe;

ωHe = omega4;
Ck4NHe = CkNHe;

(* Phasenfehlanpassung pro Atomdichte C für He *)
CΔkNHe = Ck4NHe - Ck1NHe - Ck2NHe - Ck3NHe;
(* Bei Raumtemperatur wird 100mbar =
 10000hPa Helium eingelassen. => Dichte von Helium in cm^-3 *)
NHe = 10000 / (k 293) / 10^6;


(* Phasenfehlanpassung für Helium *)
ΔkHe = NHe CΔkNHe;
```

Berechnung der normierten UV-Transmission

```
(* UV-Leistung *)
DataUV = Table[{data[[i, 10]], data[[i, 3]]}, {i, 2990, 3822}];
plotUV = ListPlot[DataUV, PlotStyle → PointSize[0.01], PlotRange → All];


(* transmittierte UV-Leistung *)
DataUVtrans = Table[{data[[i, 10]], data[[i, 16]]}, {i, 2990, 3822}];
plotUVtrans = ListPlot[DataUVtrans, PlotStyle → PointSize[0.01], PlotRange → All];


(* mit UV-Leistung normierte transmittierte UV-Leistung *)
UVtransnorm = Table[{data[[i, 10]], data[[i, 16]] / data[[i, 3]] / 0.629},
   {i, 2990, 3822}];
plotUVtransnorm = ListPlot[UVtransnorm, PlotStyle → PointSize[0.01],
   PlotRange → {0, 1.2}];


(* Ausreißer nach unten unter den Punkten der gesamten und der
 transmittierten Leistung aus den normierten Daten entfernen,
indem sie für den Fit auf den Punkt {-273.15,1} gesetzt werden. *)
UVber = Table[{UVtransnorm[[i, 1]], UVtransnorm[[i, 2]]},
   {i, 1, Length[UVtransnorm]}];
For[i = 1, i <= Length[DataUV], i++,
  If[DataUV[[i, 2]] < 0.95, UVber[[i]] = {0.0, 1.0}]];
For[i = 1, i <= Length[DataUVtrans], i++,
  If[DataUVtrans[[i, 2]] < 0.5, UVber[[i]] = {0.0, 1.0}]];


(* Für den Plot der Datenpunkte entferne ich diese Punkte komplett,
um direkt mit "PlotRange → All" alle Punkte plotten zu können. *)
UVfürPlot = Table[{UVber[[i, 1]], UVber[[i, 2]]}, {i, 1, Length[UVber]}];
r = 1;
For[i = 1, i <= Length[UVber], i++,
  If[UVber[[i, 1]] < 0.5, UVfürPlot = Delete[UVfürPlot, r], r = r + 1]];


(* Plot der normierten UV-Transmission *)
plotUVfürPlot = ListPlot[UVfürPlot, PlotStyle → PointSize[0.01], PlotRange → All];


(* Fit an die Daten *)
Fit[UVber, {1, T, T^2, T^3, T^4}, T];
plotfit =
  Plot[0.9999981302382707` - 0.010089974812617251` T + 0.0001568399543188701` T^2 -
    7.677551568709598`*^-7 T^3 + 1.134079055150164`*^-9 T^4, {T, 155, 235},
   PlotRange → All];


(* Zeige die normierten Daten und den Fit *)
Show[plotUVfürPlot, plotfit]
```

Berechnung von $G^{(3)}$ mit Dichteverteilung "Kasten mit exponentiellem Abfall"

```
(* Konfokalparameter der fundamentalen Strahlen in cm *)
b1 = 0.16;
b2 = 0.16;
b3 = 0.16;


 (* Länge der beheizten Quecksilberdampfzelle in cm *)
L = 1.5;


(* Steilheit des exponentiellen Abfalls in cm;
z.B. s=
 10 L => die Dichte N ist nach dem 10-fachen der Zellenlänge auf 1/e abgefallen *)
s = L;


(* Absorptionskoeffizient des UV-Strahls in Abhängigkeit der Temperatur der Hg-
 Zelle in cm^-1, berechnet aus normierter Transmission und Dichteprofil bei
 der maximalen Dichte des Profils NHg_0 *)
α1[T_] :=
 -1 / (s / 2 + L + s / 2) *
  Log[0.9999972484973342` - 0.01388995943843506` T + 0.00021465089545114258` T^2 -
    1.0583568333823605`*^-6 T^3 + 1.6178234847654546`*^-9 T^4]
(* Absorptionskoeffizienten der anderen fundamentalen Strahlen und des
 erzeugten Strahls *)
α2 = 0;
α3 = 0;
α4 = 0;


(* Δα bei der Dichte NHg_0 *)
Δα[T_] := α4 - (α1[T] + α2 + α3)


(* Ort der Beobachtungsebene in z-Richtung *)
zprime = L / 2 + 100 000 s;


(* Verschiebung der Foki der fundamentalen Strahlen gegenüber der Zellenmitte *)
z01 = 0;
z02 = 0;
z03 = 0;


(* Parameter aus dem Kapitel Integralgleichungsformalismus *)
ϵ1 = 2 / b1 (z - z01);
ϵ2 = 2 / b2 (z - z02);
ϵ3 = 2 / b3 (z - z03);

f = k1 / b1 (1 + I ϵ2) (1 + I ϵ3) + k2 / b2 (1 + I ϵ1) (1 + I ϵ3) + k3 / b3 (1 + I ϵ1) (1 + I ϵ2);

g = (1 + I ϵ1) (1 + I ϵ2) (1 + I ϵ3);
```

```
a = g - I 2 (z - zprime) / k4 * f;

q = f / a;


(* Berechnung einzelner Werte der Funktion G^(3) in Abhängigkeit von der
 Temperatur und Erstellen einer Tabelle *)
Monitor[
  Gtable =
   Table[{T, (b1 * ΔkHg[T]) ^ 2 16 k4 * (1 / b1 × 1 / b2 × 1 / b3)
      NIntegrate[
       rprime
        Abs[Exp[-α4 / 2 (s / 2 + L + s / 2)]
           (NIntegrate[Exp[( z + L / 2) / s] / a * Exp[-rprime ^ 2 q] Exp[
                -I (ΔkHg[T] s Exp[(z + L / 2) / s] + ΔkHe z + I Δα[T + ΔT] / 2
                     (s / 2 Exp[2 (z + L / 2) / s]))], {z, -∞, -L / 2}, MaxRecursion → 14,
              AccuracyGoal → 20 ] + NIntegrate[1 / a * Exp[-rprime ^ 2 q] Exp[
                -I (ΔkHg[T] (s + (z + L / 2)) + ΔkHe z + I Δα[T + ΔT] / 2 (s / 2 + (z + L / 2)))],
              {z, -L / 2, L / 2}, MaxRecursion → 14, AccuracyGoal → 20 ] +
            NIntegrate[Exp[( L / 2 - z) / s] / a * Exp[-rprime ^ 2 q] Exp[
                -I (ΔkHg[T] (s + L + s (1 - Exp[(L / 2 - z) / s])) + ΔkHe z +
                   I Δα[T + ΔT] / 2 (s / 2 + L + s / 2 (1 - Exp[2 (L / 2 - z) / s])))],
              {z, L / 2, ∞}, MaxRecursion → 14 , AccuracyGoal → 20 ])] ^ 2,
       {rprime, 0, ∞}]}, {T, 155 - ΔT, 230 - ΔT, 1}],
  ProgressIndicator[T, {155 - ΔT, 230 - ΔT}]];

(* Interpolation der Werte der Tabelle *)
Gfunction = Interpolation[Gtable];
```

Berechnung von |S(ω_1+ω_2)|^2

```
(* Druckverbreiterung des 6^1S - 7^1S - Übergangs →
 bei gemessenen 225°C sind es 1.25GHz was einer Dampftemperatur von ca
  .185°C entspricht *)
ΔpGHz[T_] := 2.672222312752674`*^-19 * NHg[T] * Sqrt[T + 273.15]

(* Berechnung der Proportionalitätskonstante in obiger Formel *)
Solve[1.25 == x * NHg[185] * Sqrt[185 + 273.15], x];


(* Isotopieverschiebungen des 6^1S - 7^1S - Übergangs zum 202Hg-Isotop in GHz *)
Δ6S7S198 = 0.2773 * c / 10^9;
Δ6S7S199 = 0.2599 * c / 10^9;
Δ6S7S200 = 0.1455 * c / 10^9;
Δ6S7S201 = 0.1016 * c / 10^9;
Δ6S7S202 = 0;
Δ6S7S204 = -0.1430 * c / 10^9;

(* Energie des 7S-Zustands in GHz *)
ν7S = omega7S * c / 10^9;

(* Dopplerbreite des 6^1S - 7^1S - Übergangs in GHz *)
ΔωD[T_] := 2 * Sqrt[Log[2]] * ν7S * vw[T] / c

w[T_] := 1 / (2 * Sqrt[Log[2]]) * ΔωD[T]


(* halbe natürliche Linienbreite + halbe Druckverbreiterung in GHz *)
γ7S[T_] := (1 / (32.1 * 10^-9) / (2 π 10^9) + ΔpGHz[T]) / 2;


(* Delta=ν1+ν2-ν7s Verstimmung zur Zwei-Photonen-Resonanz;
Off=Offset der unterschiedlichen Isotope zum 202-Isotop in GHz *)
ζ[T_, Off_] := 1 / w[T] * (Delta - Off + I * γ7S[T]);


(* Plasmadispersionsfunktion *)
Z[T_, Off_] := I * Sqrt[Pi] * Exp[-(ζ[T, Off])^2] * (1 + Erf[I * ζ[T, Off]]);


(* S(ω1+ω2) der unterschiedlichen Isotope, Delta in GHz,
Faktor c/10^9 um S wieder in cm anzugeben →
 Die Einheit muss zu der Berechnung von χ3a in cm^12/erg^2 passen *)
S198[T_] := Z[T, Δ6S7S198] / w[T] * c / 10^9;
S199[T_] := Z[T, Δ6S7S199] / w[T] * c / 10^9;
S200[T_] := Z[T, Δ6S7S200] / w[T] * c / 10^9;
S201[T_] := Z[T, Δ6S7S201] / w[T] * c / 10^9;
S202[T_] := Z[T, Δ6S7S202] / w[T] * c / 10^9;
S204[T_] := Z[T, Δ6S7S204] / w[T] * c / 10^9;

(* Gesamtwert der Funktion S(ω1+ω2) bei natürlichem Isotopengemisch *)
Sges[T_] := H198 * S198[T] + H199 * S199[T] + H200 * S200[T] + H201 * S201[T] +
   H202 * S202[T] + H204 * S204[T];

(* Absolutbetragsquadrat *)
Ssqr[T_] := Abs[Sges[T]]^2;

(* Für die weitere Rechnung wird die Verstimmung zur Zwei-Photonen-
 Resonanz festgesetzt *)
Delta = -0.4;
```

Berechnung von χ_{12} und χ_{34}

```
(* Oszillatorstärken der Einphotonenübergänge aus dem 7S-Zustand. Der 7^1S-
 6^3P-Übergang ist neunmal enthalten,
da bei der Berechnung von χ12 die Aufspaltung des 6^3P-
 Niveaus berücksichtigt werden soll. Die Stärken der beiden 6P-7S -
 Übergänge werden noch mit einem Faktor 3 (= g_u) multipliziert,
weil hier der P-Zustand der untere ist und in allen anderen Übergängen der S-
 Zustand *)
f7SnP = {3*0.0022, 3*0.0022, 3*0.0022, 3*0.0022, 3*0.0022, 3*0.0022,
   3*0.0022, 3*0.0022, 3*0.0022, 3*0.15, 0.11, 1.24, 1.2*10^-4, 0.029,
   0.018, 5*10^-5, 0.029, 2.6*10^-7, 0.0097, 1.6*10^-6, 0.005, 7.5*10^-6,
   0.0025, 1.7*10^-5, 0.0015, 0.061};


(* relatives Vorzeichen der jeweiligen Dipolmatrixelementprodukte *)
relsign = {-1, -1, -1, -1, -1, -1, -1, -1, -1, -1, 1, 1, 1, -1, 1, -1, 1, 1,
   1, 1, 1, 1, 1, 1, 1, 1};


(* Rydbergkonstante in cm-1 *)
Ry = 1.097373177*10^5;


(* Dipolmatrixelemente in q_e*a_0 *)
dipol6SnP = Sqrt[f6SnP / EnP * Ry];
dipol7SnP = Sqrt[f7SnP / (Abs[omega7S - EnP]) * Ry] * relsign;


(* Die Hyperfeinaufspaltung spielt natürlich nur bei der Berechnung des
 ersten Summanden von χ12 eine Rolle,
da dort die Differenz EnP-
 omega1 klein wird bei geringer Verstimmung des ersten Lasers zur 6^1S -
 6^3P - Resonanz. Sie wird, der formalen Einfachheit wegen,
auch in den restlichen Termen mit einberechnet. *)
χ12 = Sum[G6SnP[[i]] * dipol6SnP[[i]] * dipol7SnP[[i]] / (EnP[[i]] - omega1) +
    G6SnP[[i]] * dipol6SnP[[i]] * dipol7SnP[[i]] / (EnP[[i]] - omega2), {i, 1, 26}];
χ34 = Sum[G6SnP[[i]] * dipol6SnP[[i]] * dipol7SnP[[i]] / (EnP[[i]] - omega4) +
    G6SnP[[i]] * dipol6SnP[[i]] * dipol7SnP[[i]] / (EnP[[i]] + (omega4 - omega7S)),
   {i, 1, 26}];
```

Berechnung von $\chi_a^{(3)}$

```
(* Wurzel aus |S(ω1+ω2)|^2 *)
S[T_] := Sqrt[Ssqr[T]];


(* nichtlineare Suszeptibilität pro Atomdichte *)
χ3a[T_] := 8.87*10^(-25) * χ12 * χ34 * S[T];
```

Erzeugte, detektierte und auf die Daten normierte Leistung bei Lyman - α

```
(* Leistungen der fundamentalen Laser in Watt *)
P1 = 0.24;
P2 = 0.16;
P3 = 0.15;

(* Detektionseffizienz *)
eff = 0.68 * 0.7 * 1.04 * 10^(-3) * 0.12 / (h * omega4 * c);

(* Normierungsfaktor *)
η = 0.0234;


(* Erzeugte Leistung bei Lyman-α *)
P4[T_] := (24 π * 10^7 / c)^2 * k1 k2 k3 k4 * (CΔkNHg b1)^-2 * χ3a[T - ΔT]^2 * P1 P2
   P3 * Gfunction[T - ΔT];


(* Leistung umgerechnet in detektierte Photonen/s *)
P4Photonen[T_] := P4[T] * eff;


(* Plot der skalierten detektierten Photonenzahl/s *)
plotP4Photonen = Plot[η * P4Photonen[T], {T, 155, 230}, PlotRange → All,
   PlotStyle → Magenta];


(* Generiere Tabelle für Plot mit Gnuplot *)
P4Photonentable = Table[{T, η * Re[P4Photonen[T]]}, {T, 155, 230, 0.1}];


(* Schreibe die generierte Tabelle in eine Datei *)
SetDirectory["U:\Dokumente\meins\Gnuplot\Mathematica_Dataplots"];
Export["Lya.dat", P4Photonentable]


(* Zeige die Messdaten und die gerechnete Kurve *)
Show[{Datenplot, plotP4Photonen}]
```

Für die Berechnung der konvertierten Lyman-α Leistung mit einem lorentzförmigen Dichteprofil folgt nun noch der Quellcode zur Berechnung der entsprechenden Phasenanpassungsfunktion $G^{(3)}$. Dieser kann im Programm direkt mit dem Code für ein kastenförmiges Dichteprofil mit exponentiellem Abfall ausgetauscht werden.

Berechnung von $G^{(3)}$ mit lorentzförmiger Dichteverteilung

```
(* Konfokalparameter der fundamentalen Strahlen in cm *)
b1 = 0.16;
b2 = 0.16;
b3 = 0.16;


(* Breite des lorentzförmigen Dichteprofils in cm *)
β = 1.5;


(* Absorptionskoeffizient des UV-Strahls in Abhängigkeit der Temperatur der Hg-
 Zelle in cm^-1, berechnet aus normierter Transmission und Dichteprofil
 bei der maximalen Dichte des Profils NHg_0 *)
α1[T_] :=
 -1 / (β π / 4) *
  Log[0.9999972484973342` - 0.013888995943843506` T + 0.00021465089545114258` T^2 -
    1.0583568333823605`*^-6 T^3 + 1.6178234847654546`*^-9 T^4]
(* Absorptionskoeffizienten der anderen fundamentalen Strahlen und des
 erzeugten Strahls *)
α2 = 0;
α3 = 0;
α4 = 0;


(* Δα bei der Dichte NHg_0 *)
Δα[T_] := α4 - (α1[T] + α2 + α3)


(* Ort der Beobachtungsebene in z-Richtung *)
zprime = 100 000 β;


(* Verschiebung der Foki der fundamentalen Strahlen gegenüber der Zellenmitte *)
z01 = 0;
z02 = 0;
z03 = 0;


(* Parameter aus dem Kapitel Integralgleichungsformalismus *)
ϵ1 = 2 / b1 (z - z01);
ϵ2 = 2 / b2 (z - z02);
ϵ3 = 2 / b3 (z - z03);
```

```
f = k1 / b1 (1 + I ϵ2) (1 + I ϵ3) + k2 / b2 (1 + I ϵ1) (1 + I ϵ3) + k3 / b3 (1 + I ϵ1) (1 + I ϵ2);

g = (1 + I ϵ1) (1 + I ϵ2) (1 + I ϵ3);

a = g - I 2 (z - zprime) / k4 * f;

q = f / a;

(* Berechnung einzelner Werte der Funktion G^(3) in Abhängigkeit von der
 Temperatur und Erstellen einer Tabelle *)
Monitor[
  Gtable =
   Table[{T, (b1 * ΔkHg[T]) ^ 2 16 k4 * (1 / b1 × 1 / b2 × 1 / b3)
      NIntegrate[
       rprime
        Abs[Exp[-α4 / 2 (β π / 4)] NIntegrate[1 / ((1 + (2 z / β) ^ 2) a) *
             Exp[-rprime ^ 2 q] Exp[-I (ΔkHg[T] 1 / 4 β (2 ArcTan[2 z / β] + π) +
                 ΔkHe z + I 1 / 4 Δα[T + ΔT] / 2 β (2 β z / (β ^ 2 + 4 z ^ 2) + ArcTan[2 z / β] +
                    π / 2))], {z, -∞, ∞}, MaxRecursion → 14, AccuracyGoal → 20 ]] ^ 2,
       {rprime, 0, ∞}]}, {T, 155 - ΔT, 230 - ΔT, 1}],
  ProgressIndicator[T, {155 - ΔT, 230 - ΔT}]];

(* Interpolation der Werte der Tabelle *)
Gfunction = Interpolation[Gtable];
```

Anhang E

Mathematische Symbole

Hier findet sich eine Liste, der in dieser Arbeit verwendeten mathematischen Symbole. Die Ziffer in Klammern gibt die Gleichung an, in der das Symbol zuerst verwendet wurde.

$a(z, z')$	Funktion von z und z' [2.33]
a_0	Bohrscher Radius [2.59]
A	ein Abstand (siehe Abbildung 4.2) [4.1]
b	konfokaler Parameter [2.13]
B	Abstand Wand der D_2-Lampe zum Flansch [Abbildung 4.2]
c	Lichtgeschwindigkeit im Vakuum [2.4]
c.c.	das komplex konjugierte des vorherigen Ausdrucks [2.5]
const.	eine Proportionalitätskonstante, die es zu bestimmen gilt [7.1]
cos	Cosinus [2.5]
C	$C = \Delta k/N$ [2.19]
$\mathbf{d}$	Dipoloperator [2.60]
d	Durchmesser des Indiumrings [4.1]
e	Eulersche Zahl [2.5]
erf	Fehlerfunktion [2.67]
exp	Exponentialfunktion [2.22]
$\mathbf{E}(\mathbf{r}, t)$	elektrisches Feld einer Lichtwelle von $\mathbf{r}$ und t [2.1]
$\mathbf{E}(\mathbf{r})$	$\mathbf{E}(\mathbf{r}, t)$ mit abgespaltener Zeitabhängigkeit [2.5]
$\mathbf{E}(\mathbf{r}, \omega)$	Fourierkomponente von $\mathbf{E}(\mathbf{r}, t)$ [2.10]
$\Delta E_{2\gamma}$	Energiedifferenz eines Zwei-Photonen-Übergangs [2.57]
ΔE_{ab}	Energieunterschied des Niveaus b zum Niveau a [2.62]
$f(z)$	Funktion von z [2.28]
f_{ab}	Oszillatorstärke des Übergangs von Zustand a nach Zustand b [2.50]
F	Finesse [5.1]
$F^{(3)}$	Phasenanpassungsfunktion [2.11]
$F^{(3)}_{tf}$	$F^{(3)}$ im Limit starker Fokussierung der Laser [2.16]
$g(z)$	Funktion von z [2.28]

g	Entartungsfaktor eines atomaren Niveaus [2.56]
g_u	Entartungsfaktor des unteren Niveaus eines Übergangs [2.62]
G	Gewichtungsfaktor [2.56]
$G^{(3)}$	Phasenanpassungsfunktion für $\Delta k \sim N$ [2.17]
$G^{(3)}_{tf}$	$G^{(3)}$ im Limit starker Fokussierung der Laser [Abbildung 2.1]
h	Planck-Konstante [Kapitel 2.5]
H	Häufigkeit eines Isotops [2.56]
$\hbar$	$h/2\pi$ [2.57]
i	bezeichnet die imaginäre Zahl i [2.5]
$i = 1 - 4$	bezeichnet als Index den 1.,2.,3. fundamentalen Laser und das erzeugte Feld ($i = 4$) [2.5, 2.11]
Im	Imaginärteil einer komplexen Zahl [2.4]
$j = 1 - 3$	bezeichnet als Index den 1.,2. und 3. fundamentalen Laser [2.7]
J	Gesamtdrehimpuls [2.62]
k	Wellenvektor im Medium [2.11]
k_0	Wellenvektor des erzeugten Strahls im Vakuum [2.11]
k'	$k' = k_1 + k_2 + k_3$ [2.12]
Δk	Fehlanpassung der Wellenvektoren $\Delta k = k_4 - k'$ [2.13]
Δk_0	Fehlanpassung der Wellenvektoren bei der Dichte N_0 [2.41]
$\Delta k_{0,\mathrm{Hg}}$	Anteil der Fehlanpassung der Wellenvektoren durch Quecksilber bei der Dichte N_0 [A.7]
Δk_{He}	Anteil der Fehlanpassung der Wellenvektoren durch Helium [A.7]
k_B	Boltzmann-Konstante [2.54]
$\hat{k}$	komplexer Wellenvektor, der so Absorption berücksichtigt [2.42]
l	optische Weglänge zwischen den Punkten $\mathbf{r}$ und $\mathbf{r}'$ [2.22]
ln	natürlicher Logarithmus [2.66]
L	Länge der Quecksilberdampfzelle [A.4]
m	Masse eines Atoms [2.54]
m_e	Masse des Elektrons [2.50]
m_J	z-Komponente des Gesamtdrehimpulses [Kapitel 1]
M_J	x-Komponente des Gesamtdrehimpulses [2.62]
n	komplexer Brechungsindex eines Mediums [2.2]
n'	Realteil des komplexen Brechungsindexes [2.3]
N	Dichte der Atome eines Mediums [2.11]
$N(\mathbf{r})$	Dichte der Atome eines Mediums am Ort $\mathbf{r}$ [2.10]
N_0	Maximum der Dichteverteilung $N(z)$ [2.39]
$N(v_z)$	Dichte der Atome im Geschwindigkeitsintervall $v_z + dv_z$ [2.53]
$p(\omega)$	atomare Dipol-Polarisierbarkeit in Abhängigkeit der Lichtfrequenz [Kapitel 2.4]
p[mbar]	Druck in mbar [C.1]
$\mathbf{P}(\mathbf{r}, t)$	Polarisation eines Mediums [2.1]
$\mathbf{P}^{(i)}(\mathbf{r}, t)$	Anteil der Polarisation, der durch Prozesse i-ter Ordnung erzeugt wird [2.1]

$\mathbf{P}(\mathbf{r},\omega)$	Fourierkomponente von $\mathbf{P}(\mathbf{r},t)$ [2.7]
P	Leistung in Watt [2.11]
$q\,(z,z')$	Funktion von z und z' [2.33]
q_e	Elementarladung [2.50]
$\mathbf{r}$	Ortsvektor der fundamentalen Felder, Ort der Frequenzkonversion [2.1]
$\mathbf{r}'$	Beobachtungspunkt des erzeugten Feldes [2.21]
r_{hf}	Reflexionskoeffizient im hochfrequenten Bereich [3.1]
ret	es muss der retardierte Wert verwendet werden [2.21]
R	Abstand des Beobachtungspunktes zum Erzeugungspunkt: $R = \lvert\mathbf{r}' - \mathbf{r}\rvert$ [2.21]
R_0	Impedanz eines Kabels [3.1]
R_P	Widerstand eines Potentiometers [3.1]
Re	Realteil einer komplexen Zahl [2.3]
s	Faktor, der die Steilheit der Exponentialfunktion bestimmt [A.4]
$S(z)$	normierte Dichteverteilung entlang der z-Achse [2.40]
$S\,(\omega_1+\omega_2)$	Funktion deren Betragsquadrat die Abhängigkeit der konvertierten Leistung von der Zwei-Photonen-Resonanz beschreibt [2.59]
t	Zeitpunkt der Polarisationserzeugung [2.1]
T	Temperatur in Kelvin [2.54]
T[°C]	Temperatur in °C [C.1]
ΔT	Temperaturverschiebung in °C, um die berechnete Lyman-α Erzeugung unter die gemessene Kurve zu legen [Kapitel 7.4]
u	Integrationsvariable [2.64]
U	Phasenfaktor [2.27]
v_w	wahrscheinlichste Geschwindigkeit der Atome [2.53]
v_z	Geschwindigkeitskomponente eines Atoms in z-Richtung [2.52]
V	Volumen, in dem Frequenzkonversion stattfindet [2.21]
w	Parameter, definiert in Gleichung 2.66 [2.64]
x	Position entlang der x-Achse [2.25]
x'	Beobachtungspunkt des erzeugten Feldes entlang der x-Achse [2.32]
y	Position entlang der y-Achse [2.25]
y'	Beobachtungspunkt des erzeugten Feldes entlang der y-Achse [2.32]
z	Position entlang der z-Achse [2.14]
z_0	Position des Fokus entlang der z-Achse [2.14]
z'	Beobachtungspunkt des erzeugten Feldes entlang der z-Achse [2.14]
z''	Position entlang der z-Achse [2.25]
$Z(\zeta)$	Parameter, definiert in Gleichung 2.67 [2.64]
α	Absorptionskoeffizient des Mediums [2.4]
$\alpha_{i,0}$	Absorptionskoeffizient des i-ten Laserstrahls bei der Dichte N_0 [A.3]
$\Delta\alpha_0$	$\alpha_{4,0} - (\alpha_{1,0} + \alpha_{2,0} + \alpha_{3,0})$ [A.2]
β	Breite des lorentzförmigen Dichteprofils gemessen an seiner halben Höhe [7.2]
$\boldsymbol{\chi}^{(1)}$	linearer Suszeptibilitätstensor [2.1]

$\boldsymbol{\chi}^{(i)}$, $i \geq 2$	nichtlineare Suszeptibilitätstensoren [2.1]
$\chi^{(1)}$	lineare Suszeptibilität als Skalar behandelt [2.2]
$\chi^{(3)}$	nichtlineare Suszeptibilität dritter Ordnung als Skalar behandelt [2.8]
$\chi_a^{(3)}$	nichtlineare Suszeptibilität dritter Ordnung pro Atomdichte [2.10]
χ_{12}, χ_{34}	partielle Suszeptibilitäten [2.59]
ϵ	$\epsilon = 2(z - z_0)/b$ [2.13]
ϵ'	$\epsilon' = 2(z' - z_0)/b$ [2.13]
$\hat{\boldsymbol{\epsilon}}$	Polarisationsrichtung einer Lichtwelle [2.60]
ϕ	"Phasenfaktor" [2.33]
γ_{gn}	halbe homogene Linienbreite des Übergangs von Zustand g in Zustand n [2.50]
$\gamma_{nm}^{\mathrm{col}}$	Dipoldephasierungsrate [2.51]
Γ_n	gesamte Zerfallsrate des Zustandes n in alle möglichen anderen Zustände [2.51]
η	Skalierungsfaktor um die berechnete detektierte Leistung bei Lyman-α an die gemessenen Werte anzupassen [Kapitel 7.4]
κ	Verhältnis aus transmittierter Leistung zu eingestrahlter Leistung nach dem Durchgang durch ein absorbierendes Medium [B.1]
λ_0	Wellenlänge im Vakuum [2.43]
ν_0	Frequenz des 6^1S – 6^3P-Übergangs in Quecksilber [C.3]
$\Delta\nu$	Verstimmung des Lasers zum 6^1S – 6^3P-Übergang in GHz [2.44]
$\Delta\nu_C$	volle Frequenzbreite des Anteils der Druckverbreiterung am Lorentzprofil einer Spektrallinie [C.2]
$\Delta\nu_D$	volle Frequenzbreite des Anteils des Dopplerprofils einer Spektrallinie [C.3]
$\Delta\nu_N$	volle natürliche Linienbreite in Frequenz [C.2]
$\Delta\nu_V$	volle Frequenzbreite des Voigtprofils einer Spektrallinie [C.4]
π	Kreiszahl [2.2]
ρ_{nm}	Element der Dichtematrix [Kapitel 2.4]
$\sigma(\lambda_0)$	Absorptionsquerschnitt eines Atoms bei der Wellenlänge λ_0 [2.43]
ω	Winkelgeschwindigkeit einer elektromagnetischen Welle [2.4]
ω_{gn}	Winkelgeschwindigkeit der elektromagnetischen Welle, welche beim Übergang eines Atoms von Zustand g in Zustand n involviert ist [2.50]
ω_0	Winkelgeschwindigkeit eines spektralen Übergangs für ein ruhendes Atom [2.52]
$\Delta\omega_D$	Dopplerbreite eines Übergangs [2.66]
ξ	$\xi = 2z_0/b$ [2.13]
ζ	Parameter, definiert in Gleichung 2.65 [2.64]

Literaturverzeichnis

[AAB+02] M. Amoretti, C. Amsler, G. Bonomi, A. Bouchta, P. Bowe, C. Carraro, C. L. Cesar, M. Charlton, M. J. T. Collier, M. Doser, V. Filippini, K. S. Fine, A. Fontana, M. C. Fujiwara, R. Funakoshi, P. Genova, J. S. Hangst, R. S. Hayano, M. H. Holzscheiter, L. V. Jørgensen, V. Lagomarhino, R. Landua, D. Lindelöf, E. Lodi Rizzini, M. Marci, N. Madsen, G. Manuzio, M. Marchesotti, P. Montagna, H. Pruys, C. Regenfus, P. Riedler, J. Rochet, F. Rotondi, G. Rouleau, G. Testera, A. Variola, T. L. Watson, and D. P. van der Werf. Production and detection of cold antihydrogen atoms. *Nature*, 419(6906):456–459, 2002.

[AABC84] W. J. Alford, N. Andersen, K. Burnett, and J. Cooper. Collisional redistribution of light: Far-wing line shapes and polarizations for the Ba-(Ar,Xe) systems. *Physical Review A*, 30(5):2366–2380, 1984.

[And32] C. D. Anderson. The apparent existence of easily deflectable positives. *Science*, 76(1967):238–239, 1932.

[And33] C. D. Anderson. The Positive Electron. *Physical Review*, 43(6):491–494, 1933.

[AS87] W. J. Alford and A. V. Smith. Measured third-order susceptibility and excited-state oscillator strengths for atomic mercury. *Physical Review A*, 36(2):641–648, 1987.

[BBB+96] G. Baur, G. Boero, S. Brauksiepe, A. Buzzo, W. Eyrich, R. Geyer, D. Grzonka, J. Hauffe, K. Kilian, M. Lo Vetere, M. Macri, M. Moosburger, R. Nellen, W. Oelert, S. Passaggio, A. Pozzo, K. Röhrich, K. Sachs, G. Schepers, T. Sefzick, R. S. Simion, R. Stratmann, F. Stinzing, and M. Wolke. Production of antihydrogen. *Physics Letters B*, 368(3):251–258, 1996.

[BC90] P. N. Butcher and D. Cotter. *The Elements of Nonlinear Optics*. Cambridge University Press, first edition, 1990.

[Bey08] T. Beyer. Anregung des 6^1S - 7^1S Zweiphotonenübergangs in atomarem Quecksilber, 2008.

[BH75] R. G. Brewer and E. L. Hahn. Coherent two-photon processes: Transient and steady-state cases. *Physical Review A*, 11(5):1641–1649, 1975.

[Bjo75] G. C. Bjorklund. Effects of Focusing on Third-Order Nonlinear Processes in Isotropic Media. *IEEE Journal of Quantum Electronics*, 11(6):287–296, 1975.

[BKR99] R. Bluhm, V. A. Kostelecký, and N. Russell. CPT and Lorentz Tests in Hydrogen and Antihydrogen. *Physical Review Letters*, 82(11):2254–2257, 1999.

[BKV00] P. Bourgeois, M. Karolak, and G. Vasseur. Performance of the photomultiplier tubes used in the DIRC of BABAR: effect of a magnetic field and of helium. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A*, 442(1-3):105–112, 2000.

[BL89] E. C. Benck and J. E. Lawler. Lifetimes, branching ratios, and absolute transition probabilities in Hg I. *Journal of the Optical Society of America B*, 6(1):11–22, 1989.

[Boy03] R. W. Boyd. *Nonlinear Optics*. Academic Press, second edition, 2003.

[BP62] N. Bloembergen and P. S. Pershan. Light Waves at the Boundary of Nonlinear Media. *Physical Review*, 128(2):606–622, 1962.

[BW75] M. Born and E. Wolf. *Principles of Optics*. Pergamon Press, fifth edition, 1975.

[Ces01] C. L. Cesar. Zeeman effect on the 1s - 2s transition in trapped hydrogen and antihydrogen. *Physical Review A*, 64(2):023418, 2001.

[CFK+96] C. L. Cesar, D. G. Fried, T. C. Killian, A. D. Polcyn, J. C. Sandberg, I. A. Yu, T. J. Greytak, D. Kleppner, and J. M. Doyle. Two-Photon Spectroscopy of Trapped Atomic Hydrogen. *Physical Review Letters*, 77(2):255–258, 1996.

[CSWY55] O. Chamberlain, E. Segrè, C. Wiegand, and T. Ypsilantis. Observation of Antiprotons. *Physical Review*, 100(3):947–950, 1955.

[CTDL99] C. Cohen-Tannoudji, B. Diu, and F. Laloë. *Quantenmechanik 1*. Walter de Gruyter GmbH & Co. KG, second edition, 1999.

[DAB07] G. Dilecce, P. F. Ambrico, and S. De Benedictis. On $N_2(C^3\Pi_u, v = 0)$ state lifetime and collisional deactivation rate by N2. *Chemical Physics Letters*, 2007.

[Deh75] H. G. Dehmelt. Proposed $10^{14}\delta\nu < \nu$ Laser Fluorescence Sectroscopy on Tl^+Mono-Ion Oscillator II. *Bulletin of the American Physical Society*, 20:60, 1975.

[Dem00] W. Demtröder. *Experimentalphysik 3 – Atome, Moleküle und Festkörper*. Springer, second edition, 2000.

[Dem07] W. Demtröder. *Laserspektroskopie, Grundlagen und Techniken*. Springer, fifth edition, 2007.

[Dir28] P. A. M. Dirac. The Quantum Theory of the Electron. *Proceedings of the Royal Society A*, 1928.

[Dir31] P. A. M. Dirac. Quantised Singularities in the Electromagnetic Field. *Proceedings of the Royal Society A*, 1931.

[DROM92] T. W. Darling, F. Rossi, G. I. Opat, and G. F. Moorhead. The fall of charged particles under gravity: A study of experimental problems. *Reviews of Modern Physics*, 64(1):237–257, 1992.

[EWH99] K. S. E. Eikema, J. Walz, and T. W. Hänsch. Continuous Wave Coherent Lyman-α Radiation. *Physical Review Letters*, 83(19):3828–3831, 1999.

[EWH01] K. S. E. Eikema, J. Walz, and T. W. Hänsch. Continuous Coherent Lyman-α Excitation of Atomic Hydrogen. *Physical Review Letters*, 86(25):5679–5682, 2001.

[FBB+05] J. Fajans, W. Bertsche, K. Burke, S. F. Chapman, and D. P. van der Werf. Effects of Extreme Magnetic Quadrupole Fields on Penning Traps and the Consequences for Antihydrogen Trapping. *Physical Review Letters*, 95(15):155001, 2005.

[FC61] B. D. Fried and S. D. Conte. *The Plasma Dispersion Function: The Hilbert Transform of the Gaussian*. Academic Press, 1961.

[FW63] P. A. Franken and J. F. Ward. Optical Harmonics and Nonlinear Phenomena. *Reviews of Modern Physics*, 35(1):23–39, 1963.

[Gab88] G. Gabrielse. Trapped antihydrogen for spectroscopy and gravitation studies: is it possible? *Hyperfine Interactions 44*, 44(1-4):349–356, 1988.

[GBO+02a] G. Gabrielse, N. S. Bowden, P. Oxley, A. Speck, C. H. Storry, J. N. Tan, M. Wessels, D. Grzonka, W. Oelert, G. Schepers, T. Sefzick, J. Walz, H. Pittner, T. W. Hänsch, and E. A. Hessels. Background-Free Observation of Cold Antihydrogen with Field-Ionization Analysis of Its States. *Physical Review Letters*, 89(21):213401, 2002.

[GBO+02b] G. Gabrielse, N. S. Bowden, P. Oxley, A. Speck, C. H. Storry, J. N. Tan, M. Wessels, D. Grzonka, W. Oelert, G. Schepers, T. Sefzick, J. Walz, H. Pittner, T. W. Hänsch, and E. A. Hessels. Driven Production of Cold Antihydrogen and the First Measured Distribution of Antihydrogen States. *Physical Review Letters*, 89(23):233401, 2002.

[GL78] S. Gerstenkorn and P. Luc. *Atlas du spectre d'absorption de la molécule d'iode 14800 - 20000 cm^{-1}*. Éditions du Centre National de la Recherche Scientifique (CNRS), Paris, 1978.

[GLS+07] G. Gabrielse, P. Larochelle, D. Le Sage, B. Levitt, W. S. Kolthammer, I. Kuljanishvili, R. Mc Connell, J. Wrubel, F. M. Esser, H. Glückler, D. Grzonka, G. Hansen, S. Martin, W. Oelert, J. Schillings, M. Schmitt, T. Sefzick, H. Soltner, Z. Zhang, D. Comeau, M. C. George, E. A. Hessels, C. H. Storry, M. Weel, A. Speck, F. Nillius, J. Walz, and T. W. Hänsch. Antiproton Confinement in a Penning-Ioffe Trap for Antihydrogen. *Physical Review Letters*, 98(11):113002, 2007.

[GLS+08] G. Gabrielse, P. Larochelle, D. Le Sage, B. Levitt, W. S. Kolthammer, R. Mc Connell, P. Richerme, J. Wrubel, A. Speck, M. C. George, D. Grzonka, W. Oelert, T. Sefzick, Z. Zhang, A. Carew, D. Comeau, E. A. Hessels, C. H. Storry, M. Weel, and J. Walz. Antihydrogen Production within a Penning-Ioffe Trap. *Physical Review Letters*, 100(11):113001, 2008.

[GLV77] S. Gerstenkorn, J. J. Labarthe, and J. Vergès. Fine and Hyperfine Structures and Isotope Shifts in the Arc Spectrum of Mercury. *Physica Scripta*, 15(3):167–172, 1977.

[GSS+04] G. Gabrielse, A. Speck, C. H. Storry, D. Le Sage, N. Guise, D. Grzonka, W. Oelert, G. Schepers, T. Sefzick, H. Pittner, J. Walz, T. W. Hänsch, D. Comeau, and E. A. Hessels. First Measurement of the Velocity of Slow Antihydrogen Atoms. *Physical Review Letters*, 93(7):073401, 2004.

[GV75] S. Gerstenkorn and J. Vergès. Interprétation des Déplacements Isotopiques Pairs-Impairs Anormaux dans le Spectre d'Arc du Mercure. *Le Journal de Physique*, 36(6):481–486, 1975.

[Ham06] Hamamatsu. *Photomultiplier Tubes - Basics and Applications*, third edition, 2006.

[HBLW88] G. Hilber, D. J. Brink, A. Lago, and R. Wallenstein. Optical-frequency conversion in gases using Gaussian laser beams with different confocal parameters. *Physical Review A*, 38(12):6231–6239, 1988.

[HC80] T. W. Hänsch and B. Couillaud. Laser Frequency Stabilization by Polarization Spectroscopy of a Reflecting Reference Cavity. *Optics Communications*, 35(3):441–444, 1980.

[Hen05] B. Henrich. *Untersuchung elektromagnetisch induzierter Transparenz für das kontinuierliche Vier-Wellen-Mischen.* PhD thesis, Ludwig-Maximilians-Universität München, 2005.

[Hil82] R. C. Hilborn. Einstein coefficients, cross sections, f values, dipole moments, and all that. *American Journal of Physics*, 50(11):982–986, 1982.

[Hil83] R. C. Hilborn. Erratum: "Einstein coefficients, cross sections, f values, dipole moments, and all that" [am. j. phys. 50, 982 (1982)]. *American Journal of Physics*, 51(5):471, 1983.

[Hil86] G. Hilber. *Resonante Frequenzkonversion im Edelgas Krypton zur Erzeugung von frequenzveränderlicher, kohärenter Strahlung im spektralen Gebiet zwischen 72 nm und 180 nm.* PhD thesis, Universität Bielefeld, 1986.

[HKD+87] H. F. Hess, G. P. Kochanski, J. M. Doyle, N. Masuhara, D. Kleppner, and T. J. Greytak. Magnetic Trapping of Spin-Polarized Atomic Hydrogen. *Physical Review Letters*, 59(6):672–675, 1987.

[HM69] W. R. Hunter and S. A. Malo. The temperature dependence of the short wavelength transmittance limit of vacuum ultraviolet window materials–I. experiment. *Journal of Physics and Chemistry of Solids*, 30(12):2739–2745, 1969.

[HW83] R. Hilbig and R. Wallenstein. Resonant Sum and Difference Frequency Mixing in Hg. *IEEE Journal of Quantum Electronics*, 19(12):1759–1770, 1983.

[HZ93] T. W. Hänsch and C. Zimmermann. Laser spectroscopy of hydrogen and antihydrogen. *Hyperfine Interactions*, 76(3):47–57, 1993.

[JKL+05] U. D. Jentschura, S. Kotochigova, E. O. LeBigot, P. J. Mohr, and B. N. Taylor. The Energy Levels of Hydrogen and Deuterium (version 2.1). [Online] Available: http://physics.nist.gov/HDEL [2008, December 8]. National Institute of Standards and Technology, Gaithersburg, MD, 2005.

[Kac80] M. Kacprzyk. Shape of the Hg 2537 Å Resonance Line in the Presence of Hg(6^3P_1)-Hg(6^1S_0) Interactions. *Acta Physica Polonica*, 57(5):773–784, 1980.

[Klo08] Klose. Private Mitteilung durch Herrn Klose von Hamamatsu, 2008.

[Koh61] R. H. Kohler. Detection of Double Resonance by Frequency Change: Application to Hg^{201}. *Physical Review*, 121(4):1104–1111, 1961.

[KP80] P. J. Key and R. C. Preston. Magnesium fluoride windowed deuterium lamps as radiance transfer standards between 115 and 370 nm. *Journal of Physics E: Scientific Instruments*, 13(8):866–870, 1980.

[Lag87] A. Lago. *Generation of coherent tunable radiation in the extreme ultraviolet by nonlinear frequency mixing of pulsed dye laser radiation in rare gases*. PhD thesis, Universität Bielefeld, 1987.

[LD93] M. Li and H. F. Dylla. Model for the outgassing of water from metal surfaces. *Journal of Vacuum Science and Technology A*, 11(4):1702–1707, 1993.

[LHW87] A. Lago, G. Hilber, and R. Wallenstein. Optical-frequency conversion in gaseous media. *Physical Review A*, 36(8):3827–3836, 1987.

[MF98] S. A. Meyer and G. W. Faris. High-power Lyman-α source generated with an ArF excimer laser. *Optics Letters*, 23(3):204–206, 1998.

[MIK78] R. Mahon, T. J. Mc Ilrath, and D. W. Koopman. Nonlinear generation of lyman-alpha radiation. *Applied Physics Letters*, 33(4):305–307, 1978.

[Moo71] C. E. Moore. *Atomic Energy Levels As Derived From the Analyses of Optical Spectra Volume III*. NSRDS national standard reference data system, 1971.

[MS03] M. Masili and A. F. Starace. Static and dynamic dipole polarizability of the helium atom using wave functions involving logarithmic terms. *Physical Review A*, 68(1):012508 1–11, 2003.

[MSKW07] F. Markert, M. Scheid, D. Kolbe, and J. Walz. 4 W continuous-wave narrow-linewidth tunable solid-state laser source at 546 nm by externally frequency doubling a ytterbium-doped single-mode fiber laser system. *Optics Express*, 15(22):14476–14481, 2007.

[MSM+90] J. P. Marangos, N. Shen, H. Ma, M. H. R. Hutchinson, and J. P. Connerade. Broadly tunable vacuum-ultraviolet radiation source employing resonant enhanced sum-difference frequency mixing in krypton. 7(7):1254–1259, 1990.

[Nei09] V. Neises. Aufbau und Test eines Quecksilber-Heatpipe-Ofens zum resonatorinternen Vier-Wellen-Mischen, 2009.

[NG91] M. M. Nieto and T. Goldman. The arguments against "antigravity" and the gravitational acceleration of antimatter. *Physics Reports*, 205(5):221–281, 1991.

[NG92] M. M. Nieto and T. Goldman. Errata to physics reports, volume 205, number 5 (1991). *Physics Reports*, 216(5-6):343, 1992.

[NHR+00] M. Niering, R. Holzwarth, J. Reichert, P. Pokasov, Th. Udem, M. Weitz, T. W. Hänsch, P. Lemonde, G. Santarelli, M. Abgrall, P. Laurent, C. Salomon, and A. Clairon. Measurement of the Hydrogen 1S – 2S Transition Frequency by Phase Coherent Comparison with a Microwave Cesium Fountain Clock. *Physical Review Letters*, 84(24):5496–5499, 2000.

[OL77] J. J. Olivero and R. L. Longbothum. Empirical Fits to the Voigt Line Width: A brief Review. *Journal of Quantitative Spectroscopy & Radiative Transfer*, 17(2):233–236, 1977.

[O'N80] T. M. O'Neil. A confinement theorem for nonneutral plasmas. *Physics of Fluids*, 23(11):2216–2218, 1980.

[Pal91] E. D. Palik. *Handbook of optical constants of solids II.* Academic Press, Boston, 1991.

[PFH+05] A. Pahl, P. Fendel, B. R. Henrich, J. Walz, T. W. Hänsch, and K. S. E. Eikema. Generation of Continuous Coherent Radiation at Lyman-α and $1S$–$2P$ Spectroscopy of Atomic Hydrogen. *Laser Physics*, 15(1):46–54, 2005.

[PLL75] D. Perrin-Lagarde and R. Lennuier. étude Expérimentale de l'Influence des Interactions Hg-Hg sur le Profil Spectral de la Radiation Hg 2 537 Å. *Le Journal de Physique*, 36(5):357–366, 1975.

[Pre40] W. M. Preston. The Origin of Radio Fade-Outs and the Absorption Coefficient of Gases for Light of Wave-Length 1215.7 A. *Physical Review*, 57(10):887–894, 1940.

[PRL+93] W. D. Phillips, S. L. Rolston, P. D. Lett, T. Mc Ilrath, N. Vansteenkiste, and C. I. Westbrook. Laser manipulation and cooling of (anti)hydrogen. *Hyperfine Interactions*, 76(1):265–272, 1993.

[PSG06] T. Pohl, H. R. Sadeghpour, and G. Gabrielse. New Interpretations of Measured Antihydrogen Velocities and Field Ionization Spectra. *Physical Review Letters*, 97(14):143401, 2006.

[PSNY06] T. Pohl, H. R. Sadeghpour, Y. Nagata, and Y. Yamazaki. Cooling by Spontaneous Decay of Highly Excited Antihydrogen Atoms in Magnetic Traps. *Physical Review Letters*, 97(21):213001, 2006.

[Rei84] J. F. Reintjes. *Nonlinear Optical Parametric Processes in Liquids and Gases*. Academic Press, 1984.

[Rot94] A. Roth. *Vacuum Sealing Techniques*. Springer-Verlag New York, Inc., 1994.

[SA86] A. V. Smith and W. J. Alford. Vacuum ultraviolet oscillator strengths of Hg measured by sum-frequency mixing. *Physical Review A*, 33(5):3172–3180, 1986.

[SA87] A. V. Smith and W. J. Alford. Practical guide for $7S$ resonant frequency mixing in mercury: generation of light in the 230–185- and 140–120-nm ranges. *Journal of the Optical Society of America B*, 4(11):1765–1770, 1987.

[SAH88] A. V. Smith, W. J. Alford, and G. R. Hadley. Optimization of two-photon-resonant four-wave mixing: application to 130.2-nm generation in mercury vapor. *Journal of the Optical Society of America B*, 5(7):1503–1519, 1988.

[Sch98] A. Schuster. Potential Matter. – A Holiday Dream. *Nature*, 58(1503):367, 1898.

[Sch63] W. G. Schweitzer, Jr. Hyperfine Structure and Isotope Shifts in the 2537-Å Line of Mercury by a New Interferometric Method. *Journal of the Optical Society of America*, 53(9):1055–1072, 1963.

[Sch06] M. Scheid. Frequenzvervierfachung eines Yb:YAG-Scheibenlasers – ein UV-Lasersystem bei 253,7 nm, der 6^1S-6^3P Linie in Quecksilber, 2006.

[SH71] P. W. Smith and T. W. Hänsch. Cross-Relaxation Effects in the Saturation of the 6328-Å Neon-Laser Line. *Physical Review Letters*, 26(13):740–743, 1971.

[SH82] D. Sonntag and D. Heinze. *Sättigungsdampfdruck- und Sättigungsdampfdichtetafeln für Wasser und Eis*. VEB Deutscher Verlag für Grundstoffindustrie, first edition, 1982.

[Sie86] A. E. Siegman. *Lasers*. University Science Books, first edition, 1986.

[SMW+07] M. Scheid, F. Markert, J. Walz, J. Wang, M. Kirchner, and T. W. Hänsch. 750 mW continuous-wave solid-state deep ultraviolet laser source at the 253.7 nm transition in mercury. *Optics Letters*, 32(8):955–957, 2007.

[SSS+04] C. H. Storry, A. Speck, D. Le Sage, N. Guise, G. Gabrielse, D. Grzonka, W. Oelert, G. Schepers, T. Sefzick, H. Pittner, M. Herrmann, J. Walz, T. W. Hänsch, D. Comeau, and E. A. Hessels. First Laser-Controlled Antihydrogen Production. *Physical Review Letters*, 93(26):263401, 2004.

[Sta07] Stanford Research Systems, 1290 D Reamwood Avenue Sunnyvale, CA 94089 USA. *Multichannel Scaler/Averager Model SR430 Manual*, 1.5 edition, 2007.

[SWL+93] I. D. Setija, H. G. C. Werij, O. J. Luiten, M. W. Reynolds, T. W. Hijmans, and J. T. M. Walraven. Optical Cooling of Atomic Hydrogen in a Magnetic Trap. *Physical Review Letters*, 70(15):2257–2260, 1993.

[SYG01] T. M. Squires, P. Yesley, and G. Gabrielse. Stability of a Charged Particle in a Combined Penning-Ioffe Trap. *Physical Review Letters*, 86(23):5266–5269, 2001.

[Ver95] J. T. Verdeyen. *Laser Electronics*. Prentice Hall, Inc., third edition, 1995.

[VV01] R. K. Vatsa and H. R. Volpp. Absorption cross-sections for some atmospherically important molecules at the h atom lyman-α wavelength (121.567 nm). *Chemical Physics Letters*, 340(3-4):289–295, 2001.

[Wal93] J. T. M. Walraven. Trapping and cooling of (anti)hydrogen. *Hyperfine Interactions*, 76(1):205–220, 1993.

[WAW97] M. Wutz, H. Adam, and W. Walcher. *Handbuch Vakuumtechnik, Theorie und Praxis*. Vieweg, sixth edition, 1997.

[WH04] J. Walz and T. W. Hänsch. A Proposal to Measure Antimatter Gravity Using Ultracold Antihydrogen Atoms. *General Relativity and Gravitation*, 36(3):561–570, 2004.

[WPH+03] J. Walz, H. Pittner, M. Herrmann, P. Fendel, B. Henrich, and T. W. Hänsch. Cold antihydrogen atoms. *Applied Physics B*, 77(8):713–717, 2003.

[YH76] M. A. Yuratich and D. C. Hanna. Nonlinear atomic susceptibilities. *Journal of Physics B*, 9(5):729–750, 1976.

[ZMLG99] E. Zanger, R. Müller, B. Liu, and W. Gries. Diode-pumped industrial high-power cw all solid-state laser at 266 nm. *SPIE Conference Proceedings*, 3862:255–261, 1999.

[ZSB89] M. G. Zadnik, S. Specht, and F. Begemann. Revised Isotopic Composition of Terrestrial Mercury. *International Journal of Mass Spectrometry and Ion Processes*, 89(1):103–110, 1989.

Danksagung

Zum Abschluss möchte ich mich bei allen herzlich bedanken, die diese Arbeit möglich gemacht haben und zu ihrem Gelingen beigetragen haben. Insbesondere gilt mein Dank dabei:

- Prof. Walz für die Möglichkeit an diesem spannenden Experiment zu forschen.
- Prof. Heil für die bereitwillige Übernahme der Zweitkorrektur.
- Daniel Kolbe und Martin Scheid, meinen Doktorandenkollegen, für die tolle Zusammenarbeit an diesem Experiment und die vielen fruchtbaren Diskussionen.
- Der Institutswerkstatt für die kompetente Umsetzung technischer Aufgaben.
- Christine Best, Elvira Stuck-Kerth und Christiane Hembs für ihren unermüdlichen Einsatz in administrativen Fragen.
- Den netten Angestellten der Warenannahme und der Etatverwaltung für die stets schnelle und zuverlässige Arbeit, mit der sie einen reibungslosen experimentellen Fortschritt ermöglichen.
- Erwin Gries für seine freundliche und schnelle Hilfe in Installationsfragen und darüber hinaus.
- Meinen lieben Eltern, die gemeinsam ihre „Kinder“ stets unterstützen, wo immer sie nur können. Ihr seid echt klasse.
- Meinem Schatz, Tanja, die mir immer zur Seite steht und mir dabei mehr gibt, als ich hier aussprechen kann.

Erklärung

Hiermit erkläre ich, dass ich die vorliegende Arbeit selbstständig verfasst und keine anderen als die angegebenen Hilfsmittel und Quellen verwendet habe.

Mainz, den 15. Mai 2009

Frank Markert